



Impulsions attosecondes de lumière : caractérisation temporelle et sources de deuxième génération

Fabien Quere

► To cite this version:

Fabien Quere. Impulsions attosecondes de lumière : caractérisation temporelle et sources de deuxième génération. Physique [physics]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. tel-00455370

HAL Id: tel-00455370

<https://theses.hal.science/tel-00455370>

Submitted on 10 Feb 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Habilitation à diriger des Recherches

présentée

devant l'Université de Paris XI

par

Fabien QUÉRE

Équipe : Groupe Physique à Haute Intensité

Laboratoire : CEA/DSM/IRAMIS/SPAM

Titre du mémoire :

*Impulsions attosecondes de lumière :
caractérisation temporelle et sources de deuxième génération*

Soutenue le 14 janvier 2010 devant la commission d'examen composée de

M. :	Paul	MORIN	Président
MM. :	Anne	L'HUILLIER	Rapporteurs
	François	AMIRANOFF	
	Manuel	JOFFRE	
MM. :	Philippe	ZEITOUN	Examineurs
	Annie	KLISNICK	

Préambule

L'objet de ce mémoire est de replacer les travaux de recherche que j'ai réalisés depuis 2001 dans leur contexte scientifique, et de mettre ainsi en évidence les différentes contributions que j'ai pu apporter aux thématiques sur lesquelles j'ai travaillé. L'objectif n'est pas de présenter une revue exhaustive des sujets abordés ici : j'ai choisi de parler seulement des résultats d'autres équipes qui ont le plus influencé mon travail, ou qui ont marqué une étape importante dans l'évolution de ces sujets.

J'ai volontairement cherché à retranscrire à travers ma propre expérience la façon dont certaines thématiques importantes de la "science attoseconde" ont pu progresser durant les dix dernières années : ce genre d'informations, très instructif de mon point de vue, est généralement difficile à extraire de la littérature scientifique. De cette façon, j'espère que ce manuscrit pourra aider certains étudiants qui débutent dans ce domaine à rapidement se familiariser avec les nombreux résultats accumulés durant cette période et aux chemins parfois sinueux qui y ont mené, et ainsi à pouvoir plus rapidement amener leurs propres pierres à l'édifice.

Table des matières

Table des matières	1
Table des figures	3
Introduction	5
1 Méthodes de caractérisation temporelle d'impulsions attosecondes	11
1.1 Mesures temporelles femtosecondes à courte longueur d'onde	12
1.1.1 Photoionisation en présence d'un champ d'habillage	13
1.1.2 Le première mesure d'impulsions "quasi-attosecondes"	14
1.2 Modèle semi-classique de la photoionisation en présence d'un laser	16
1.2.1 Dynamique de l'électron dans le continuum	16
1.2.2 Effet du champ laser sur l'état final mesuré	17
1.3 Première méthode de mesure d'impulsion attoseconde unique : la caméra à balayage attoseconde	19
1.3.1 La caméra à balayage en polarisation linéaire	19
1.3.2 Résolution temporelle	21
1.4 La mesure des trains d'impulsions attosecondes : une autre perspective .	23
1.5 Modèle quantique de la photoionisation en présence d'un laser	25
1.5.1 Photoionisation avec le champ XUV seul	25
1.5.2 Modèle quantique "SFA" en présence de champ laser	27
1.5.3 Lien entre les modèles quantique et semi-classique	28
1.6 Méthodes pour une caractérisation complète de champs attosecondes . .	31
1.6.1 SPIDER attoseconde	31
1.6.2 FROG CRAB	37
1.7 Conclusions et perspectives	45
2 Les miroirs plasmas : de l'ionisation à la génération d'harmoniques	51
2.1 Filtrage temporel par miroir plasma	54
2.1.1 Principe	54
2.1.2 Etudes expérimentale et numérique détaillées	55
2.1.3 Implémentation de miroirs plasmas sur un laser multi-Terawatt .	60
2.2 Mécanismes de génération d'harmoniques sur miroir plasma	64
2.2.1 Miroir oscillant relativiste	66

2.2.2	Interlude : bref historique	69
2.2.3	Emission cohérente de sillage	70
2.3	Mise en évidence expérimentale	78
2.3.1	Extension du spectre harmonique	80
2.3.2	Dépendance en intensité laser	82
2.3.3	Largeur spectrale des harmoniques individuelles	84
2.3.4	Divergence du signal harmonique	85
2.3.5	Synthèse et comparaison aux simulations numériques	86
2.4	Etude des propriétés de phase des harmoniques	87
2.4.1	Mise en évidence expérimentale de la phase intrinsèque	87
2.4.2	Origine de la phase intrinsèque CWE : étude numérique	90
2.4.3	Mesure de la dépendance en intensité laser du temps d'émission	94
2.5	Conclusions et perspectives	97
Conclusions et perspectives générales		101
A Liste de publications		107
B Sélection d'articles		119
	Attosecond Streak Camera (PRL 2002)	121
	Attosecond Spectral Shearing Interferometry (PRL 2003)	125
	FROG CRAB (PRA 2005)	129
	Temporal Characterization of attosecond XUV fields (JMO 2005)	133
	Complete Characterization of a Plasma Mirror (PRE 2004)	155
	Coherent Wake Emission of High-order Harmonics (PRL 2006)	167
	Plasma Mirrors for Ultrahigh Intensity Optics (Nature Phys. 2007)	171
	Phase Properties of High-Order Harmonics from Plasma Mirrors (PRL 2008)	177
	Coherent Dynamics of Plasma Mirrors (Nature Phys. 2008)	181
Bibliographie		195

Table des figures

1	Principe de la génération d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques	7
1.1	Schéma de principe d'une caméra à balayage	13
1.2	Principe physique d'une mesure de durée par photoionisation à deux couleurs	14
1.3	Résultats expérimentaux des premières mesures d'impulsions "quasi-attosecondes"	15
1.4	Effet du champ laser sur la trajectoire de l'électron : modèle semi-classique	17
1.5	Effet du champ laser sur la vitesse finale de l'électron : modèle semi-classique	18
1.6	Principe de la caméra à balayage attoseconde (polarisation linéaire du laser)	20
1.7	Méthode de la caméra à balayage attoseconde : spectres de photoélectrons	22
1.8	Illustration de la méthode de tomographie chronocyclique	23
1.9	Principe de la technique RABBITT	24
1.10	Modulation de phase quantique induite par un champ laser	29
1.11	Principe de la technique SPIDER attoseconde	33
1.12	Simulation d'une mesure SPIDER attoseconde	34
1.13	Principe d'une mesure FROG	38
1.14	Exemples de traces FROG CRAB simulées et des reconstructions obtenues	42
1.15	Evolution des mesures d'impulsions attosecondes uniques depuis 2001	47
1.16	Evolution des mesures de trains d'impulsions attosecondes depuis 2001	48
2.1	Profil temporel typique d'une impulsion ultrabrève amplifiée	53
2.2	Principe du filtrage temporel par miroir plasma	55
2.3	Réflexivité d'un miroir plasma en fonction de la fluence incidente	56
2.4	Utilisation d'impulsions à dérive de fréquence pour la caractérisation d'un miroir plasma	58
2.5	Profil spatial d'intensité laser avec et sans déclenchement du miroir plasma	59
2.6	Diagrammes fonctionnels d'un miroir plasma	60
2.7	Installation d'un miroir plasma simple sur UH10	61
2.8	Effet d'un miroir plasma simple sur le contraste temporel	62
2.9	Premiers spectre harmoniques générés avec UH10	62
2.10	Système de double miroir plasma installé sur UH10	63

2.11	Effet d'un double miroir plasma sur le contraste temporel	64
2.12	Simulation PIC de la génération d'harmoniques par effet Doppler	68
2.13	Champ réfléchi par un miroir plasma dans le cas de génération d'harmoniques par effet Doppler	68
2.14	Vue d'ensemble du processus d'émission cohérente de sillage	71
2.15	Visualisation de l'effet Brunel dans l'espace des phases $x - p_x$	73
2.16	Formation d'un pic de densité électronique par les électrons de Brunel	73
2.17	Fronts d'onde des oscillations plasmas excitées par les électrons de Brunel	75
2.18	Couplage entre oscillations plasmas et ondes électromagnétiques	76
2.19	Localisation du point d'émission des impulsions CWE	77
2.20	Mécanisme CWE observé dans les simulations PIC	79
2.21	Champ réfléchi par un miroir plasma dans le cas de génération d'harmoniques par CWE	79
2.22	Spectres d'harmoniques de sillage obtenus en utilisant des cibles composées de différents matériaux.	81
2.23	Spectres d'harmoniques relativistes et non-relativistes	82
2.24	Variation du signal harmonique CWE avec l'éclairement laser dans les simulations numériques	83
2.25	Dépendance en intensité du signal harmonique intégré spatialement en régime non-relativiste, mesuré expérimentalement	84
2.26	Dépendance en intensité du spectre harmonique, en régimes relativiste et non-relativiste	85
2.27	Manifestation dans le domaine spatial de la phase harmonique	86
2.28	Spectres harmoniques CWE pour différentes dérives de fréquence de l'impulsion génératrice	89
2.29	Mise en évidence expérimentale de la phase spectrale des harmoniques de sillage	89
2.30	Mise en évidence expérimentale de la phase spatiale des harmoniques de sillage	90
2.31	Etude numérique des écarts à la périodicité des trains d'impulsions attosecondes générés sur miroir plasma	92
2.32	Evolution avec l'intensité laser des trajectoires des électrons responsables de la génération d'harmoniques CWE et Doppler	93
2.33	Interférences à trois sources harmoniques	95
2.34	Mesure expérimentale de la variation en intensité laser de la phase harmonique CWE	96
2.35	Mesure des divergences des harmoniques CWE et Doppler sur ASTRA	98
2.36	Mesure d'un train d'impulsions attosecondes CWE par autocorrélation non-linéaire	99

Introduction

L'immense majorité des systèmes physiques qui nous entourent sont des systèmes dynamiques hors-équilibre, c'est-à-dire en évolution dans le temps. Résoudre temporellement l'évolution de ces systèmes est bien souvent essentiel pour en comprendre le comportement physique.

Le travail fondateur de Galilée sur la chute des corps au début du 17^{ième} siècle [1] illustre parfaitement ce rôle crucial de la résolution temporelle en Science. C'est parce qu'il a mesuré pour la première fois quantitativement la position d'un corps en mouvement *en fonction du temps* que Galilée a finalement pu énoncer les premières lois correctes sur le mouvement des corps. Obtenir une résolution temporelle suffisante était un point crucial de cette expérience : il y a encore peu de temps, la méthode utilisée par Galilée pour obtenir une telle résolution avec les moyens expérimentaux rudimentaires de l'époque faisait débat parmi les historiens des Sciences [2]. Bien que Galilée, dans sa description de l'expérience [1], affirme avoir utilisé à la fois une clepsydre - "l'horloge à eau" inventée pendant l'antiquité- et son rythme cardiaque, certains chercheurs ont mis en doute le fait que ces méthodes aient vraiment pu donner une précision temporelle suffisante pour obtenir des résultats concluants.

Cet exemple historique montre qu'améliorer la résolution temporelle des méthodes de mesure est depuis les origines de la Science moderne un thème de recherche de premier ordre, dont les retombées ont toujours concerné de nombreuses disciplines.

Le rôle des lasers

Dans cette "course contre le temps", les lasers ont joué depuis leur invention un rôle essentiel [3]. Dès le début des années 70, la technique dite de blocage de modes a permis d'obtenir des impulsions lasers d'une durée de l'ordre de quelques picosecondes, plus courtes que tout autre signal généré jusqu'alors. L'amélioration constante de cette technique a permis d'aboutir à des impulsions lumineuses de quelques femtosecondes (fs) seulement, au milieu des années 90. Ces impulsions lumineuses dites ultrabrèves présentent de nombreux intérêts à la fois d'un point de vue scientifique et technologique.

Une application majeure de ces impulsions est bien évidemment leur utilisation pour des mesures résolues en temps, basées sur un schéma dit pompe-sonde, où une partie du faisceau laser est utilisée pour initier une dynamique dans un système, et une autre partie, décalée temporellement, permet de sonder l'état du système à différents instants après l'excitation. Des durées inférieures à la centaine de femtosecondes permettent de résoudre temporellement les mouvements des atomes dans des molécules ou des solides

excités : ces techniques pompe-sonde ont ainsi joué un rôle essentiel en Chimie, en rendant possible l'observation en temps réel de la rupture ou de la formation de liaisons chimiques. Ce domaine de recherche a notamment été initié par A. Zewail, qui a reçu pour cette contribution le prix Nobel de Chimie en 1999.

Des femtosecondes aux attosecondes

Qu'en est-il du mouvement des électrons dans la matière ? De façon très qualitative, la mécanique quantique nous apprend que le temps caractéristique d'évolution d'un paquet d'ondes est $T = 2\pi\hbar/W$, où W est l'écart typique entre deux niveaux d'énergie propres du système. Toujours de façon qualitative, cette différence d'énergie W est d'autant plus grande que l'électron est confiné spatialement. Ainsi, le mouvement des électrons dans la matière met en jeu des temps de plus en plus courts, qui vont de la dizaine de femtosecondes à moins d'une attoseconde (as), lorsque l'on passe de nanostructures semiconductrices ($W \approx$ qq meV), à des orbitales moléculaires ($W \approx$ qq eV), puis aux couches électroniques internes d'atomes ($W \approx 0.1$ à $1keV$) [4]. Jusqu'à récemment, le mouvement des électrons dans la matière restait dans la plupart des cas -notamment dans les atomes et les molécules- inaccessible aux méthodes résolues en temps. Pour dépasser cette limitation, il est nécessaire de passer sous la barrière de la femtoseconde, et donc de générer des impulsions dites attosecondes, c'est à dire dont la durée se situe entre 10^{-18} s et quelques 10^{-16} s.

D'un point de vue physique et technologique, passer sous cette barrière de la femtoseconde pose un problème bien particulier, qui n'a pu être résolu que récemment. En effet, les périodes optiques dans la gamme visible du spectre électromagnétique sont typiquement de l'ordre de la femtoseconde, et il est donc clair que le spectre d'une impulsion attoseconde s'étend nécessairement à plus haute fréquence, dans le domaine de l'extrême ultraviolet ou au delà. Obtenir des milieux lasants dans cette gamme spectrale est extrêmement difficile. Bien que cela soit possible depuis le milieu des années 80 en utilisant des inversions de population dans des plasmas [5], les largeurs de gain de ces milieux sont extrêmement faibles, et peuvent au mieux supporter des durées d'impulsions picosecondes. Il n'existe donc pas à ce jour de "laser attoseconde" à proprement parler. La meilleure piste, pour l'instant totalement théorique, pour obtenir un tel laser est basée sur des schémas de lasers à électrons libres dans le domaine extrême UV ou X, mettant en jeu des paquets d'électrons extrêmement brefs [6].

Génération d'harmoniques d'ordre élevé

A ce jour, c'est donc par un tout autre moyen que des impulsions attosecondes ont pu être générées, depuis le début des années 2000 [7, 8]. L'idée est de prendre comme point de départ une onde laser visible, et d'induire sur cette onde une forte distorsion temporelle, par interaction non-linéaire avec un système (Fig. 1). La réponse non-linéaire du système au champ exciteur est généralement périodique : la distorsion induite sur le champ par cette réponse l'est alors également. L'onde résultante consiste donc en une série de Fourier, dont le spectre est constitué d'harmoniques de la fréquence incidente.

Si la distorsion induite par l'interaction est bien localisée temporellement, on peut alors obtenir un train d'impulsions lumineuses de durée inférieure à la période optique du

laser, en éliminant la fréquence fondamentale de départ et en sélectionnant un groupe d'harmoniques dans le spectre. Les impulsions les plus courtes sont obtenues lorsque toutes les harmoniques sont en phase : la durée d'impulsion est alors de T/N , où T est la période de la distortion induite et N le nombre d'harmoniques sélectionnées. Par conséquent, si le laser est initialement dans la gamme visible ou proche infrarouge, T est de l'ordre de la fs , et on peut espérer obtenir des impulsions lumineuses dans la gamme attoseconde par cette méthode, en sélectionnant typiquement 10 harmoniques ou plus.

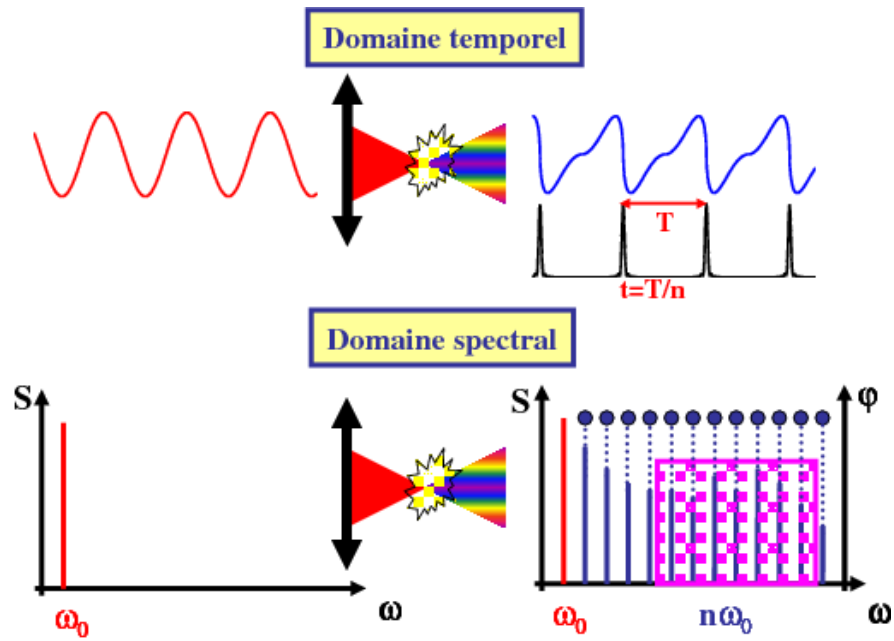


FIG. 1 – Principe de la génération d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques. Les figures du haut illustrent l'effet de l'interaction non-linéaire dans le domaine temporel, et les figures du bas dans le domaine spectral. Le train d'impulsions représenté en noir en haut correspond au profil d'intensité obtenu en sélectionnant uniquement un groupe d'harmoniques (situé dans le cadre magenta sur le spectre d'harmoniques) dans le spectre du champ distordu (champ présenté en bleu). Dans ce cas d'école, on suppose que toutes les harmoniques sont en phase (points bleus dans le graphe en bas à droite).

Cette possibilité d'utiliser la génération d'harmoniques d'ordre élevé d'un laser pour obtenir des impulsions attosecondes de lumière a été soulignée dès 1990 par Hansch [9], et en 1992 par Farkas et Thot [10]. Les analyses théoriques de ces derniers auteurs ont été motivées par le fait que, depuis la fin des années 80, l'utilisation d'impulsions lasers ultrabrèves intenses permettait déjà l'obtention d'harmoniques d'ordre très élevé ($N \approx 100$) d'un laser infrarouge (800 nm typiquement), par interaction avec un gaz atomique [11, 12]. Ces articles prospectifs ont immédiatement eu un fort impact, car ils suggéraient finalement que des trains d'impulsions attosecondes étaient potentiellement déjà produits expérimentalement. Dans les années suivantes, des études théoriques et

numériques ont démontré que les harmoniques générées dans les gaz possédaient effectivement une relation de phase appropriée pour obtenir une source attoseconde [13], et des schémas de génération permettant de passer d'un train d'impulsions à une impulsion isolée ont été proposés [14, 15].

Le problème de la mesure temporelle à l'échelle attoseconde

Tous les éléments nécessaires pour *générer* des impulsions attosecondes -au moins sous forme de trains- étaient donc disponibles dès le milieu des années 90. Cependant, aucune méthode n'existait alors pour effectivement *mesurer* de telles impulsions. En effet, comme nous le verrons dans le chapitre 2, il était impossible de transposer directement les techniques de mesure bien établies dans le visible aux impulsions attosecondes, et de nouvelles méthodes de mesures étaient donc nécessaires. Si quelques idées ont été proposées à la fin des années 90 [16, 17], il a fallu attendre 2001 pour qu'une solution réaliste à ce problème émerge finalement et que l'existence des impulsions attosecondes soit finalement démontrée expérimentalement.

C'est précisément à ce moment clef que j'ai commencé mon post-doc dans le laboratoire du Pr. Paul Corkum au National Research Council of Canada (Ottawa), fortement impliqué dans ce thème de recherche. J'ai ainsi eu l'opportunité de suivre les développements de la métrologie attoseconde dès ses débuts, et j'ai pu apporter quelques contributions significatives à ce sujet, en proposant notamment une technique de mesure qui semble aujourd'hui progressivement s'imposer comme la méthode de référence [18]. Le développement de telles techniques et ma contribution à la résolution de ce problème font l'objet du premier chapitre de ce mémoire.

Limites des sources attosecondes actuelles

Jusqu'à récemment, les seules sources d'impulsions attosecondes démontrées expérimentalement reposaient toutes sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des gaz atomiques ou moléculaires. Le processus physique sous-jacent est bien connu depuis environ une quinzaine d'années [19, 20] : il s'agit de la recollision avec leur ion parent des électrons arrachés aux atomes ou molécules du milieu par le champ laser. Ce type de source a permis de générer des impulsions attosecondes uniques d'une durée légèrement inférieure à 100 *as* [21], et de telles impulsions ont d'ores et déjà été utilisées dans quelques expériences pompe-sonde sur la dynamique ultrarapide des électrons dans des atomes [22, 23] et des métaux [24].

Ces sources se heurtent aujourd'hui à trois limitations principales [21], qui constituent de sérieux obstacles au développement de la science attoseconde :

- (i) *Une énergie par impulsion attoseconde limitée à la gamme nJ (pour une impulsion isolée).* La principale conséquence de cette limite est qu'aucune expérience pompe-sonde utilisant une impulsion attoseconde à la fois pour pomper et pour sonder un système n'a encore pu être réalisée à ce jour. Les expériences résolues temporellement précédemment mentionnées ont mis en jeu la combinaison d'une impulsion attoseconde avec une impulsion laser femtoseconde.
- (ii) *Une énergie de photon ne dépassant pas la centaine d'eV.* De ce fait, les électrons

de coeur des atomes ne peuvent pas encore être excités par ces impulsions, et les phénomènes de dynamique électronique les plus rapides au sein des atomes restent encore inaccessibles.

- (iii) *Une durée limitée à la centaine d'attosecondes.* Cette limite est déterminée en partie par la limitation précédente sur l'étendue spectrale, et détermine la résolution temporelle aujourd'hui accessible à des expériences pompe-sonde.

Toutes ces limitations proviennent *in fine* du fait que la génération d'harmoniques dans les gaz ne peut mettre en jeu des intensités laser supérieures à quelques 10^{15} W/cm^2 . Au delà de cette gamme, le champ laser ionise fortement le milieu, ce qui réduit fortement la génération d'harmoniques par plusieurs effets combinés -notamment la déplétion du niveau fondamental des atomes générateurs et la perte de l'accord de phase dans le milieu de génération. De nombreux travaux ont été et sont encore réalisés pour tenter d'étendre ce processus à de plus hautes intensités lasers : les résultats obtenus jusqu'à présent semblent cependant montrer que les performances actuelles de ces sources sont proches des limites ultimes du processus de génération.

Vers de nouvelles générations de source attoseconde

En attendant le développement éventuel de vrais lasers attosecondes, basés par exemple sur les lasers à électrons libres, de meilleures sources peuvent être obtenues en continuant à exploiter la génération d'harmoniques d'ordre élevé de lasers visibles. Il faut pour cela trouver de nouveaux mécanismes de génération d'harmoniques, qui ne soient pas limités par l'ionisation du système et qui permettent ainsi d'exploiter les intensités les plus élevées délivrées par les lasers ultrabrefs actuels. Ces intensités sont aujourd'hui de l'ordre de $10^{20} - 10^{21} \text{ W/cm}^2$ dans la gamme du proche infrarouge : lorsqu'il interagit avec une cible, un tel champ laser crée un plasma, au sein duquel il induit un mouvement relativiste des électrons. A ces intensités, on peut espérer obtenir de nouvelles sources attosecondes en exploitant ce mouvement relativiste des charges pour induire, par effet Doppler, une compression temporelle et une conversion en fréquence du champ laser. La difficulté est de réussir à générer un mouvement relativiste cohérent d'un ensemble macroscopique d'électrons, de façon à obtenir une source de lumière attoseconde intense, qui préserve les propriétés de cohérence de la source laser.

Une configuration particulièrement prometteuse dans cette voie consiste à réfléchir une impulsion laser ultraintense sur une cible solide. Cette cible est fortement ionisée par le champ laser dès le début de l'impulsion, et cette impulsion se réfléchit donc sur un plasma. La réflexion sur un tel "miroir plasma" peut mener, notamment par effet Doppler, à la génération d'harmoniques d'ordre très élevé (énergie de photon jusqu'au keV), associées dans le domaine temporel à des impulsions attosecondes extrêmement brèves et énergétiques [25].

Durant les 5 dernières années, mon travail de recherche s'est concentré sur la physique de base de ces miroirs plasmas. Mes collaborateurs et moi avons apporté plusieurs contributions significatives à ce sujet. D'un point de vue théorique, nous avons identifié un nouveau mécanisme de génération d'harmoniques sur miroir plasma, l'émission cohérente de sillage [26], qui n'avait encore jamais été analysé en détail. D'un point de vue

expérimental, nous avons développé de nouveaux outils pour étudier ce phénomène dans des conditions bien contrôlées, et avons ainsi pu mettre en évidence expérimentalement les différents mécanismes de génération d'harmoniques [27]. Ces travaux sont présentés dans la deuxième partie de ce mémoire.

Chapitre 1

Méthodes de caractérisation temporelle d'impulsions attosecondes

Avant de présenter les solutions apportées au problème de la mesure des propriétés temporelles des impulsions attosecondes, il est intéressant de se demander quelle est la principale difficulté de fond qui a rendu ces mesures si délicates. On a parfois pu lire que cela était lié à leur extrême brièveté, ou encore au fait qu'aucune impulsion plus courte susceptible de servir de référence, ou de "sonde", n'était disponible pour leur mesure. Avec le recul, je pense qu'aucun de ces deux arguments n'est vraiment pertinent. La brièveté des impulsions n'est pas un obstacle en elle-même : il est tout à fait possible -bien que non-trivial- de construire une ligne à retard présentant une précision et une stabilité attoseconde. L'absence d'impulsion plus courte ne pose pas non plus de réel problème de principe : pour preuve, de nombreuses méthodes de mesure n'utilisant aucune référence existent par exemple pour les impulsions femtosecondes.

La difficulté de réaliser des mesures temporelles d'impulsions attosecondes est *in fine* liée à la gamme spectrale dans laquelle elles se situent, ainsi qu'à la grande largeur de leur spectre. En effet, une impulsion lumineuse de durée 100 as, limitée par transformée de Fourier, a un spectre de largeur 20 eV environ. Pour atteindre de telles largeurs, le spectre de ces impulsions ne peut être restreint à la gamme visible, mais s'étend nécessairement dans l'extrême ultraviolet ou au delà. Manipuler la lumière dans cette gamme spectrale est extrêmement difficile, en particulier du fait de la très forte absorption de la matière.

En outre, la plupart des méthodes de mesure d'impulsions ultrabrèves utilisées dans le visible ou proche visible sont implémentées par le biais d'effets optiques non-linéaires dans des cristaux -comme par exemple la génération de seconde harmonique ou la somme de fréquence [28]. Soulignons que, contrairement à une idée très répandue, il n'est pas indispensable en principe d'utiliser de tels effets non-linéaires pour effectuer une mesure temporelle [29]. Cela s'avère être l'approche la plus appropriée pour la gamme visible. Au contraire, trouver les milieux adaptés et atteindre les intensités nécessaires pour induire

de tels effets non-linéaires est extrêmement difficile à plus courte longueur d'onde.

Nous allons voir qu'une solution à ce problème a finalement pu être trouvée en tirant parti d'une caractéristique essentielle de ce type de rayonnement, à savoir sa capacité à ioniser la matière par absorption d'un photon unique. Nous verrons tout d'abord comment ce phénomène d'ionisation a pu être exploité dans les années 90 pour mesurer des impulsions de courte longueur d'onde de durée femtoseconde, au moyen de la photoionisation en présence d'un champ laser (section 1.1). C'est à partir de l'analyse de ce processus au moyen d'un modèle semi-classique (section 1.2) que la première méthode de mesure pour impulsion attoseconde isolée, la caméra à balayage attoseconde, a pu être mise au point (section 1.3). Ces travaux et les mesures effectuées en parallèle sur des trains d'impulsions, toujours en utilisant l'ionisation en présence d'un laser (section 1.4), ont motivé le développement d'un modèle quantique permettant une analyse plus quantitative du processus (section 1.5). À partir de ce modèle, des méthodes de mesures plus précises et plus versatiles ont finalement pu être mises au point (section 1.6), et permettent aujourd'hui de déterminer expérimentalement l'évolution temporelle précise du champ électrique d'impulsions attosecondes même complexes.

1.1 Mesures temporelles femtosecondes à courte longueur d'onde

Avant même que l'idée de générer des impulsions attosecondes ne soit proposée, le problème de la caractérisation temporelle d'impulsions lumineuses de courte longueur d'onde (appelées pour simplifier impulsions XUV dans la suite de cette partie) s'était bien évidemment posé, que ce soit pour déterminer la durée de l'émission X de plasmas, ou la durée des harmoniques individuelles émises par interaction avec un gaz.

Les caméras à balayage de fente fournissent une solution adaptée pour des durées de quelques picosecondes -voire quelques centaines de femtosecondes à l'heure actuelle (voir par exemple [30]). Dans ces dispositifs, l'impulsion lumineuse crée un paquet d'électrons par effet photélectrique sur une photocathode (Cf. Fig. 1.1). La durée de ce paquet, très proche de celle de l'impulsion lumineuse, est mesurée en accélérant ces électrons vers un système de détection résolue spatialement, tout en induisant une déflexion transverse, temporellement variable, de ces charges par une rampe ultrarapide de champ électrique. L'étendue spatiale du signal d'électrons sur le détecteur permet de déterminer directement la durée du paquet de charge, et ainsi de l'impulsion lumineuse de départ. La résolution temporelle des caméras à balayage (ou "streak camera" en anglais) est cependant insuffisante pour mesurer des émissions ultrabrèves < 100 fs), telle que la génération d'harmoniques dans un gaz. Au cours des années 90, plusieurs équipes -en particulier celle de Pierre Agostini en France et celle de C. Shank aux USA [31, 32, 33]- ont développé une solution extrêmement ingénieuse pour mesurer de telles impulsions, que nous décrivons dans la section ci-dessous.

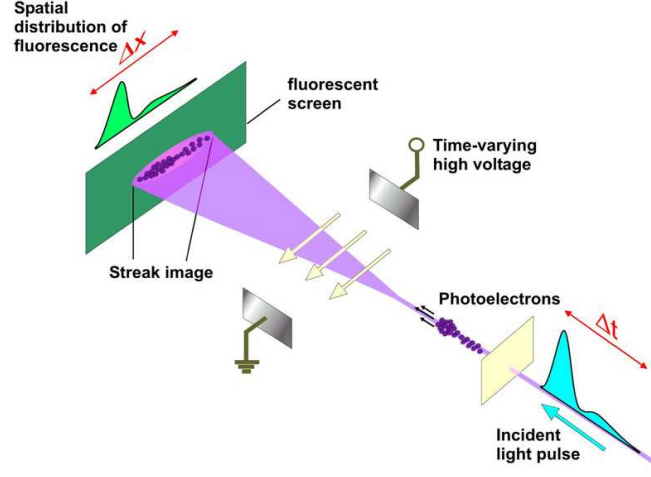


FIG. 1.1 – Schéma de principe d'une caméra à balayage pour la mesure temporelle d'impulsions lumineuses de courte longueur d'onde. Image : Max Planck Institute for Quantum Optics / Vienna University of Technology.

1.1.1 Photoionisation en présence d'un champ d'habillage

L'idée est de tirer parti de la courte longueur d'onde des impulsions étudiées pour photoioniser les atomes d'un gaz, par simple absorption à un photon. Le profil temporel d'émission des photoélectrons ainsi créés correspond au profil d'intensité de l'impulsion excitatrice, et, comme dans les caméras à balayage, c'est ce profil d'émission que l'on va chercher à mesurer.

Pour cela, on réalise la photoionisation en présence d'un champ laser dit "d'habillage", en envoyant simultanément dans le milieu une impulsion laser ultrabrève et l'impulsion à caractériser. Les photoélectrons générés par l'absorption d'un photon de l'impulsion XUV vont alors pouvoir également émettre ou absorber un ou plusieurs photons laser (Cf. Fig. 1.2). Ceci donne lieu à l'apparition de pics satellites ("side-bands" en anglais) dans le spectre de photoélectrons, autour de la raie principale induite par l'impulsion à caractériser.

Ce signal satellite n'est généré que lorsque les deux champs sont simultanément présents dans le gaz, car les électrons ne peuvent absorber ou émettre un photon laser qu'au moment précis où ils absorbent le photon XUV et sont éjectés de l'atome. Avant cela, ils se trouvent dans l'état fondamental de l'atome : le photon laser n'est pas assez énergétique pour induire une transition réelle vers un niveau excité, et on s'assure que l'intensité laser est trop faible pour induire une absorption multiphotonique. Après l'absorption du photon XUV, l'électron est libre et ne peut donc absorber ou émettre un photon laser qu'à l'occasion d'une collision avec un atome, ce qui est très peu probable dans un milieu dilué tel qu'un gaz.

En mesurant l'intensité de ces satellites en fonction du délai entre les deux impulsions, on obtient donc un signal de corrélation croisée entre leurs enveloppes. Si la

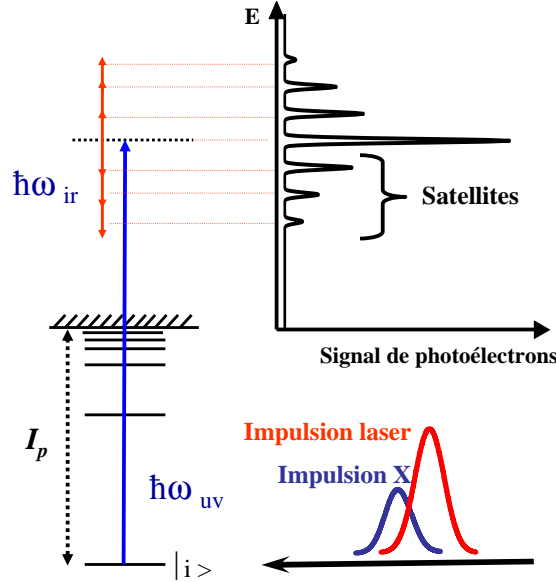


FIG. 1.2 – Principe physique d'une mesure de durée par photoionisation à deux couleurs. La flèche bleue représente un photon XUV, et les flèches rouges des photons lasers.

durée de l'impulsion laser est connue, on peut ainsi déterminer celle de l'impulsion XUV. Cette méthode a notamment permis les premières mesures de durée d'harmoniques individuelles générées dans des gaz [32, 33].

En l'absence de bruit, la résolution temporelle peut en principe être bien inférieure à la durée τ_L de l'impulsion laser servant de référence (typiquement quelques dizaines de femtosecondes) : en pratique cependant, la présence inévitable de bruit limite la résolution à une valeur typiquement de l'ordre de τ_L . Ainsi, cette méthode n'est a priori pas suffisamment précise pour être utilisée pour des mesures à l'échelle attoseconde. Néanmoins, elle a fourni une très précieuse piste de départ pour le développement de nouvelles méthodes adaptées aux impulsions attosecondes, comme nous allons le voir à présent.

1.1.2 Le première mesure d'impulsions "quasi-attosecondes"

A la fin des années 90, le groupe de Ferenc Krausz, en Autriche, développe des sources lasers capables de délivrer des impulsions infrarouges de seulement quelques cycles optiques (typiquement 2 à 3 cycles optiques à mi-hauteur), suffisamment énergétiques pour atteindre les intensités nécessaires à la génération d'harmoniques dans les gaz [3]. De telles impulsions doivent permettre de restreindre l'émission XUV à un seul cycle optique, et ouvre donc la voie à l'obtention d'impulsions attosecondes uniques, plutôt qu'à des trains tels que ceux générés avec des impulsions lasers plus longues. Les spectres XUV obtenus par interaction avec un gaz présentent dans ces conditions une gamme où l'on ne distingue plus d'harmoniques séparées, mais seulement un composante

continue, ce qui suggère que l'émission attoseconde n'est effectivement plus périodique. Cependant, se pose encore une fois le problème de la mesure de ces impulsions attosecondes.

Pour résoudre ce problème, le groupe de Ferenc Krausz choisit d'utiliser une variante de la méthode de la corrélation croisée avec une impulsion laser, décrite ci-dessus [34]. L'impulsion laser utilisée est la même que celle servant pour la génération, et a une durée de 7 fs environ. L'idée sous-jacente est donc de tirer parti de la très faible durée de l'impulsion laser pour au moins estimer la durée de l'impulsion XUV, potentiellement attoseconde. Le signal obtenu par cette équipe en 2001 est présenté sur la figure 1.3. On n'observe naturellement pas de satellites dans le spectre, puisque le spectre initial (sans laser) a une largeur de 5 eV, supérieure à l'énergie du photon laser d'habillage (1.5 eV). On constate cependant deux effets assez nets :

- Un décalage du spectre de photoémission vers les basses énergies, induit par le champ laser.
- Un léger élargissement du spectre en présence du champ laser.

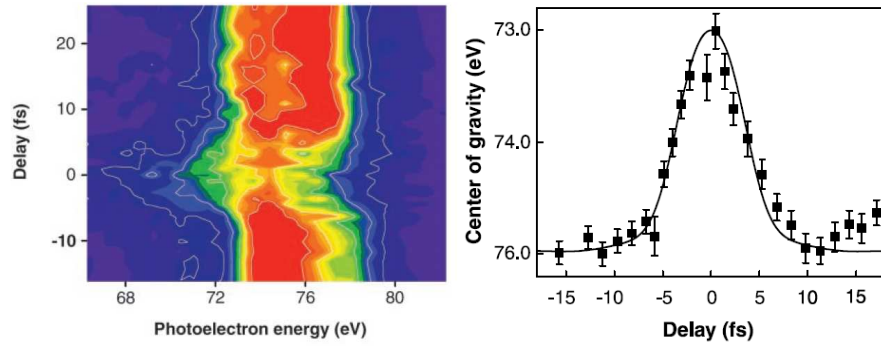


FIG. 1.3 — Résumé des résultats expérimentaux des premières mesures d'impulsions "quasi-attosecondes". La figure de gauche montre le spectre de photoémission mesuré en fonction du délai entre l'impulsion XUV quasi-attoseconde et le champ laser. Celle de droite montre la position du centre de gravité de ce spectre en fonction du délai. C'est de cette courbe de corrélation croisée qu'a été extraite la durée de l'impulsion XUV (≈ 1.8 fs). Extrait de la référence [34].

Cette équipe interprète ces effets au moyen d'un modèle semi-classique très simple, que nous décrirons dans la section suivante. Ils attribuent ainsi le décalage vers les basses énergies à l'effet Stark dynamique induit sur les niveaux d'énergie électroniques par le champ laser d'habillage ¹. D'après l'interprétation proposée, l'observation de cet effet est rendue possible par la géométrie très particulière et inhabituelle de cette expérience : au lieu de collecter tous les électrons émis (à l'aide d'une bouteille magnétique par exemple, comme cela était le cas dans les mesures antérieures), seuls les électrons émis à 90° de la direction de polarisation du laser sont collectés. Ceci présente deux intérêts essentiels :

¹Avec le recul, on peut aujourd'hui dire que cette interprétation n'est pas tout à fait correcte : le décalage observé est également dû à l'émission de photon laser, et pas seulement à l'effet Stark. L'interprétation exacte de cet effet est possible avec le modèle quantique présenté plus loin, mais dépasse le cadre de ce mémoire.

- on limite le signal parasite de photoélectrons induit par le champ laser seul (électrons dits "ATI" pour "Above-Threshold Ionization").
- l'absorption/émission de photons laser dans cette direction est fortement réduite, permettant ainsi de bien isoler l'effet Stark

Hors résonance, cet effet Stark dynamique est maximum pour les niveaux du continuum, pour lesquels il a une valeur de l'ordre de l'énergie pondéromotrice $U_p = eE_L^2/4m\omega_L^2$, où e est la charge de l'électron, m sa masse, E_L l'amplitude du champ électrique du laser, et ω_L la fréquence angulaire du laser. En mesurant ce décalage en fonction du délai entre les impulsions XUV et laser, l'équipe autrichienne obtient une corrélation croisée entre $U_p(t)$ (soit l'enveloppe de l'impulsion laser) et l'enveloppe de l'impulsion XUV. La durée de l'impulsion XUV est ainsi estimée à $1.8(+0.7/-1.2)$ fs. Il s'agit donc de la première mesure d'impulsion lumineuse approchant la limite attoseconde.

En dépit de la géométrie originale utilisée, la méthode de mesure en elle-même n'est pas réellement nouvelle, et ne permet pas plus d'effectuer de mesure à l'échelle attoseconde que la méthode des "side-bands". Mais cette expérience a renforcé l'idée [16] qu'il était éventuellement possible d'étendre les techniques de mesure basées sur la photoionisation en présence de champ laser à la gamme attoseconde.

C'est en cherchant à interpréter ces mesures de façon détaillée, et notamment à expliquer de façon plus précise le décalage du spectre vers les basses énergies, que la première méthode de mesure attoseconde sera mise au point. Cette première méthode, baptisée "caméra à balayage attoseconde" [35], fut conçue quasiment simultanément par les équipes de Ferenc Krausz en Autriche et de Paul Corkum au Canada, avec de fortes interactions entre les deux équipes. Elle fut imaginée à partir d'un modèle semi-classique de l'ionisation à deux couleurs [35], que nous décrivons avant de présenter la technique de mesure elle-même.

1.2 Modèle semi-classique de la photoionisation en présence d'un laser

1.2.1 Dynamique de l'électron dans le continuum

Dans la suite de cette partie, les calculs analytiques sont réalisés en unités atomiques afin d'alléger les formules. Considérons un électron dans un état lié d'un atome, exposé à la superposition d'un champ de grande fréquence ω_X (*i.e.* $\omega_X \gg I_p$, où I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome) et d'un champ laser d'intensité modérée et de faible fréquence ω_L ($\omega_L \ll I_p$). On suppose que la fréquence du champ laser est suffisamment basse et son intensité suffisamment faible pour ne pas affecter la dynamique de l'électron dans cet état lié.

Physiquement, la grande différence de fréquence entre les deux champs sépare naturellement le processus de photoionisation à deux couleurs en deux étapes : ionisation par absorption d'un photon XUV, suivie de l'accélération de l'électron libéré par le champ laser [36, 37]. Si $\omega_X \gg I_p$ et $U_p \gg \omega_L$, la mécanique classique est suffisante pour décrire la seconde étape [38, 39]. Considérons donc un électron éjecté dans le continuum par le

champ XUV à un instant t_i , avec une énergie cinétique initiale $W_0 = v_0^2/2 = \omega_X - I_p$, où v_0 est la vitesse initiale de l'électron. Puisque $\omega_X \gg I_p$, on néglige l'influence du potentiel ionique sur le mouvement de l'électron dans le continuum. Partant de l'équation de Newton, on obtient alors facilement la quantité de mouvement de l'électron en fonction du temps :

$$\mathbf{p}(t) = \mathbf{A}(t) + [\mathbf{v}_0 - \mathbf{A}(t_i)] \quad (1.1)$$

où $\mathbf{A}(t)$ est le potentiel vecteur total. On a $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_X(t) + \mathbf{A}_L(t)$, avec $\mathbf{A}_X(t)$ et $\mathbf{A}_L(t)$ les potentiels vecteurs des champs XUV et laser en jauge de Coulomb, tels que $\mathbf{E}_X(t) = -\partial\mathbf{A}_X/\partial t$ et $\mathbf{E}_L(t) = -\partial\mathbf{A}_L/\partial t$. Sachant que $|\mathbf{A}_X(t)| \approx |\mathbf{E}_X(t)|/\omega_X$ et $|\mathbf{A}_L(t)| \approx |\mathbf{E}_L(t)|/\omega_L$, on peut clairement négliger \mathbf{A}_X devant \mathbf{A}_L , du fait à la fois des différences d'amplitude et de fréquence des deux champs.

L'évolution temporelle de $|\mathbf{p}(t)|$ est présentée sur la figure 1.4. Le premier terme de droite dans l'équation (1.1) décrit le mouvement d'oscillation de l'électron libre dans le champ laser, clairement identifiable sur la figure 1.4. Ce mouvement tend vers 0 à mesure que le champ laser décroît. Le second terme entre crochets est déterminé par la condition initiale $\mathbf{p}(t_i) = \mathbf{v}_0$ à l'instant d'ionisation t_i . Ce terme constant correspond à la vitesse finale \mathbf{v} de l'électron en fin d'interaction avec les champs : c'est cette vitesse, dite de dérive, qui est mesurée expérimentalement. Elle diffère de la vitesse \mathbf{v}_0 juste après l'ionisation par le terme $-\mathbf{A}_L(t_i)$.

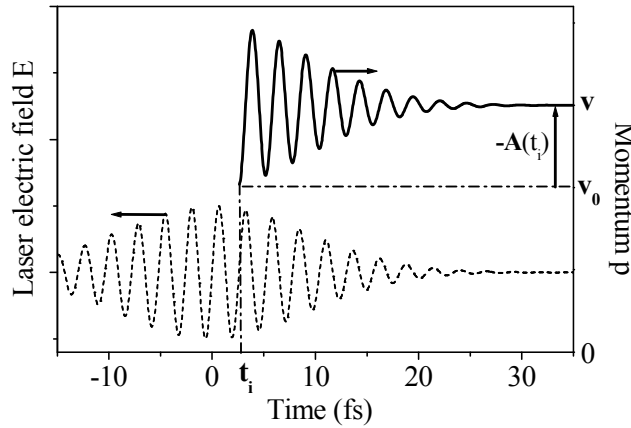


FIG. 1.4 – Evolution temporelle de la quantité de mouvement $|\mathbf{p}(t)|$ d'un électron éjecté dans le continuum en présence d'un champ laser à 800 nm, polarisé linéairement, à un temps t_i tel que le champ électrique du laser (ligne pointillée) est nul. La vitesse initiale \mathbf{v}_0 de l'électron après ionisation est supposée parallèle à la polarisation laser.

1.2.2 Effet du champ laser sur l'état final mesuré

L'effet du champ laser sur la vitesse de dérive peut-être visualisé en traçant $|\mathbf{v}|$ en fonction de l'angle d'observation θ en coordonnées polaires [35, 34, 7, 40] (figure 1.5,

panneau de gauche). En l'absence de champ laser, la vitesse finale est indépendante de θ , et cette distribution est un cercle de rayon $|\mathbf{v}_0|$ centré sur $|\mathbf{v}| = 0$ (cercle en tirets). En présence du champ laser, pour un temps d'ionisation t_i fixé, cette distribution reste un cercle de même rayon, mais son centre est maintenant déplacé du vecteur $-\mathbf{A}_L(t_i)$ par rapport au point $|\mathbf{v}| = 0$ (cercle en trait plein).

Dans un champ polarisé linéairement, ce cercle va donc osciller le long de l'axe de polarisation du laser lorsque t_i varie, alors que pour un champ laser polarisé circulairement, il va effectuer un mouvement circulaire autour de $|\mathbf{v}| = 0$. Cette représentation qualitative montre que, excepté dans la direction de polarisation, le champ laser ne change pas seulement l'énergie cinétique de l'électron, mais le dévie également de sa direction de propagation initiale.

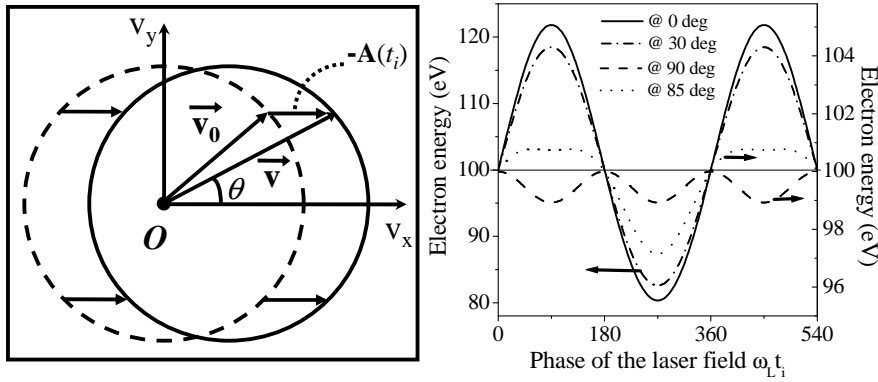


FIG. 1.5 – Effet du champ laser sur la vitesse finale de l'électron. Panneau de droite : énergie cinétique de dérive W d'un photoélectron en fonction de sa phase d'ionisation $\omega_L t_i$, pour 4 angles d'observation θ , pour un champ laser polarisé linéairement, avec $\lambda = 800$ nm, $I = 9$ TW/cm², $U_p \approx 0.54$ eV, et $W_0 = \Omega_X - I_p = 100$ eV. Noter que deux échelles d'énergie différentes sont utilisées, selon les courbes. Ces courbes peuvent être comprises comme résultant de l'oscillation avec $\omega_L t_i$ du "cercle de vitesse" (panneau de gauche), le long de l'axe de polarisation du champ laser.

Pour obtenir l'énergie cinétique de dérive $W = v^2/2$ en fonction de l'angle *d'observation* (et non d'émission) des électrons, mesurée expérimentalement, on résout l'équation polynomiale, du second ordre en v , $v_0^2 = (\mathbf{v} + \mathbf{A}(t_i))^2$, ce qui donne pour un champ polarisé linéairement, dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$\begin{aligned} W &= W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2(\omega_L t_i) \pm \alpha \sqrt{8W_0 U_p} \cos \theta \sin(\omega_L t_i) \\ \alpha &= \sqrt{1 - (2U_p/W_0) \sin^2 \theta \sin^2(\omega_L t_i)} \end{aligned} \quad (1.2)$$

θ est l'angle d'observation des électrons par rapport à la direction de polarisation du laser. Pour $U_p < W_0/2$, seul le signe positif a un sens dans l'équation (1.2). Cette équation montre comment le décalage en énergie $\delta W = W - W_0$ induit par le champ laser varie avec l'angle d'observation et le temps d'ionisation t_i . Sur la figure 1.5, δW est tracé en fonction de $\omega_L t_i$ pour différents angles d'observation. Le champ laser induit une modulation périodique de l'énergie cinétique de dérive des électrons éjectés dans le continuum par le champ XUV.

Il se trouve que ce résultat extrêmement simple, obtenu grâce à un modèle élémentaire, est essentiel pour comprendre la plupart des techniques de mesure attoseconde basées sur la photoionisation à deux couleurs.

Complément : interprétation de l'expérience Autrichienne

Le modèle semi-classique permet de comprendre qualitativement les résultats des premières mesures d'impulsions "quasi-attosecondes" présentées dans la section 1.1.2. En effet, sur la courbe de la figure 1.5 (graphe de droite) correspondant à $\theta = 90^\circ$, on constate que dans cette direction de détection, l'énergie des électrons est toujours diminuée sous l'effet du champ laser. En considérant le panneau de gauche de la figure 1.5, on comprend que cela est physiquement dû au fait que les électrons détectés dans cette direction subissent essentiellement une déflexion perpendiculaire à leur direction initiale de propagation. Moyenné sur un cycle optique, le décalage en énergie induit vaut $-U_p$ d'après l'équation (1.2), comme observé expérimentalement.

Cependant, d'après ce modèle, l'énergie des électrons devrait osciller à deux fois la période du laser (Fig. 1.5 et Eq.(1.2)) lorsque le délai entre les deux champs varie. Ces oscillations n'ont pas été observées lors de cette première expérience du groupe autrichien, mais l'ont été quelques mois plus tard par le même groupe, après l'amélioration de leur montage expérimental (cf. section 1.7).

1.3 Première méthode de mesure d'impulsion attoseconde unique : la caméra à balayage attoseconde

Cette variation ultrarapide de l'énergie des photoélectrons en fonction de la phase du champ laser à l'instant d'ionisation est la clef de la première méthode de mesure *véritablement* attoseconde proposée [35] puis démontrée expérimentalement [41] : la méthode de la caméra à balayage attoseconde, qui s'inspire du principe des caméras à balayage standards. Elle consiste à utiliser la variation de la quantité de mouvement des électrons en fonction du temps d'ionisation (Eq. (1.1)), pour encoder la structure temporelle de l'impulsion attoseconde dans les distributions énergétique ou angulaire des photoélectrons (cf. Fig. 1.6). *Ainsi, ce n'est plus l'enveloppe de l'impulsion laser qui fournit la référence temporelle, mais le champ électrique du laser, qui oscille à l'échelle femtoseconde du cycle optique.*

J'ai été directement impliqué dans la première analyse qualitative et quantitative de cette méthode de mesure, réalisée non seulement à l'aide du modèle semi-classique présenté ci-dessus, mais aussi d'un modèle quantique. Les aspects les plus importants de la méthode peuvent être appréhendés au moyen du modèle semi-classique. Le modèle quantique, indispensable pour effectuer une étude quantitative de la méthode, et plus généralement essentiel pour la métrologie attoseconde, sera donc présenté ultérieurement, dans la section 1.5. Je résume ci-dessous les principales conclusions de cette analyse, détaillées dans les références [35, 40] (annexe B1 et B4).

1.3.1 La caméra à balayage en polarisation linéaire

Dans la version la plus simple de cette méthode -la seule démontrée expérimentalement à ce jour- un champ laser polarisé linéairement est utilisé, et on compare les

spectres de photoélectrons mesurés dans une direction donnée ², avec et sans champ laser. La durée de l'impulsion attoseconde se déduit du changement de largeur spectrale induit par le laser (Fig. 1.6 et 1.7).

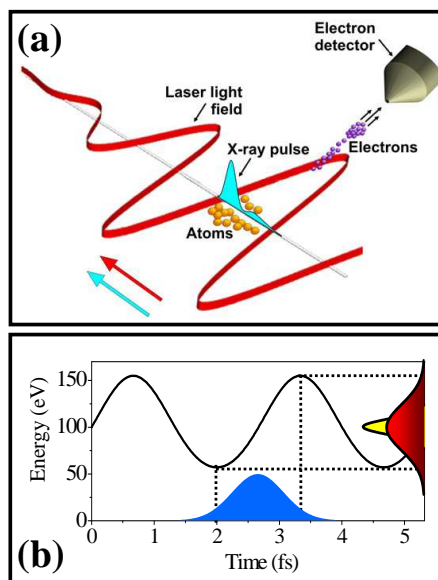


FIG. 1.6 – Principe d'une mesure de type caméra à balayage attoseconde, dans le cas d'une polarisation linéaire du laser. (a) Schéma de principe de l'expérience (image : Max Planck Society). (b) Effet sur le spectre de photoélectrons. La courbe gaussienne en bleu schématise le profil d'intensité de l'impulsion attoseconde, et les gaussiennes en jaune et rouge représentent le spectre en énergie des photoélectrons, respectivement sans et avec champ laser. La sinusoïde correspond à l'énergie finale de l'électron en fonction du temps, en présence du laser, calculée au moyen du modèle semi-classique pour $\theta = 0$, $W = 100$ eV, $I = 50$ TW/cm², et $\lambda = 800$ nm. Pour une mesure de ce type, l'impulsion attoseconde est synchronisée avec le champ laser de telle sorte que le balayage en énergie soit approximativement linéaire.

Ceci suppose que le balayage en énergie $W(t)$ soit approximativement linéaire pendant toute la durée de l'impulsion attoseconde. Il est donc nécessaire de synchroniser le temps t_M du maximum de l'impulsion avec le champ électrique du laser de telle façon que $\partial^2 W / \partial t^2 = 0$. Pour la même raison, l'impulsion attoseconde doit être courte devant la demi-période de $W(t)$ (Figure 1.5), qui est de $T_L/2$ à $\theta = 0$ (soit 1300 as pour un laser à 800 nm) et de $T_L/4$ à $\theta = \pi/2$ (soit 650 as pour un laser à 800 nm). Seules la largeur à mi-hauteur et la dérive de fréquence linéaire ("chirp" en anglais) de l'impulsion attoseconde peuvent être obtenues dans cette approche élémentaire (Fig. 1.7) : cette impulsion doit donc avoir une structure temporelle relativement simple pour que le résultat de l'analyse soit pertinent.

²pas nécessairement à 90° de la polarisation laser comme dans l'expérience précédente

1.3.2 Résolution temporelle

Pour une impulsion attoseconde limitée par transformée de Fourier, la résolution temporelle de cette méthode peut être estimée relativement simplement. Dans ce cas, la largeur ΔW_X du spectre de l'impulsion varie en $1/\tau_X$, où τ_X est la durée de l'impulsion attoseconde. L'élargissement spectral ΔW_L dû au balayage en énergie induit par le laser est quant à lui proportionnel à τ_X , et augmente avec l'intensité du champ laser. L'élargissement relatif $\beta_L = \Delta W_L / \Delta W_X$ induit par le champ laser varie donc en τ_X^2 .

En l'absence total de bruit, il serait en principe possible de réaliser des mesures avec $\beta_L \ll 1$, mais il est clair qu'en pratique on devra plutôt atteindre $\beta_L \approx 1$ pour obtenir un résultat exploitable - la valeur exacte nécessaire dépend du niveau de bruit et de la résolution spectrale. Plus l'impulsion à mesurer est courte, plus l'intensité laser nécessaire pour remplir ce critère est élevée. En pratique, la mesure devient impossible lorsque le spectre en énergie des photoélectrons générés par l'ionisation des atomes par le laser lui-même, commence à se superposer avec celui des photoélectrons générés par l'impulsion attoseconde. À partir de ce raisonnement, on obtient une résolution ultime de 70 as pour la mesure d'une impulsion limitée par transformée de Fourier, dont le spectre est centré sur 100 eV [35]. Ce chiffre doit être considéré comme un ordre de grandeur, et non comme une limite stricte.

Complément : variantes de la méthode

Différentes variantes de cette méthode sont possibles, selon la polarisation du champ laser notamment. Par exemple, en utilisant un champ laser polarisé circulairement, on peut encoder la structure temporelle de l'impulsion attoseconde dans la distribution angulaire des photoélectrons ayant une énergie donnée, et non plus dans leur distribution en énergie. Soulignons qu'une idée similaire, utilisant la déflexion en polarisation circulaire, avait déjà été proposée par Constant et Corkum dès 1997 [16]. Cependant, cette méthode antérieure n'incluait pas de résolution en énergie dans la détection des électrons. De ce fait, il était nécessaire pour analyser les résultats, de supposer que la vitesse initiale v_0 des électrons après photoionisation est négligeable devant celle acquise dans le champ laser (*i.e.* $\Omega_X - I_p \ll U_p$). Cette condition, extrêmement difficile à satisfaire expérimentalement, rendait la technique quasiment inutilisable en pratique. L'idée sous-jacente est cependant déjà celle de la caméra à balayage attoseconde.

Complément : extension de la méthode : tomographie chronocyclique

Après cette première étude, j'ai utilisé le modèle quantique de la photoionisation pour montrer -simultanément avec l'équipe de Ian Walmsley à Oxford [42]- que cette méthode peut-être considérée comme une mesure tomographique de la distribution temps-énergie $\Upsilon(t, W)$ du paquet d'ondes électroniques généré par l'impulsion attoseconde [40]. En effet, le balayage temporel linéaire en énergie induit par le champ laser donne lieu, en première approximation, à une rotation de $\Upsilon(t, W)$ dans l'espace temps-énergie (Fig. 1.8). De ce point de vue, la méthode de la caméra à balayage attoseconde consiste à mesurer la projection de cette distribution selon l'axe des énergies (*i.e.* le spectre de photoélectrons) pour différents angles de rotation (par exemple avec et sans champ laser).

À partir de ces mesures de type tomographique, un calcul très simple, proposé par C. Dorrer dans le contexte des impulsions femtosecondes [43], permet de déterminer la phase spectrale de l'impulsion attoseconde. On peut donc en principe obtenir une reconstruction complète d'impulsions même relativement complexes -ce qui n'était pas du tout évident dans l'analyse de

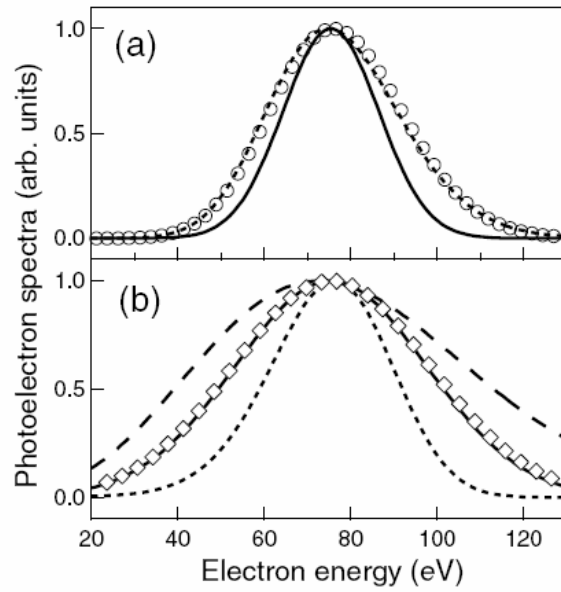


FIG. 1.7 – (a) Spectres de photoélectron produits par une impulsion xuv limitée par transformée de Fourier (70 as FWHM). Courbe pleine : sans champ laser ; cercles : avec champ laser ($I = 6.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$), modèle semi-classique ; courbe en pointillés : avec champ laser, modèle quantique (Cf. section 1.5) ; (b) Spectres produits par une impulsion xuv à dérive de fréquence (70 as FWHM). Courbe pleine : sans champ laser ; courbe en tirets : dérive de fréquence positive ; courbe en pointillés : dérive de fréquence négative. Les carrés correspondent au cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier, avec le même spectre (35 as FWHM). L'intensité laser est la même qu'en (a). Ces résultats montrent que l'effet du laser sur le spectre dépend non seulement de la durée, mais aussi de la dérive de fréquence. Cet effet n'est pas nécessairement un élargissement, mais peut-être un affinement dans le cas d'une impulsion avec dérive de fréquence de signe opposé au balayage en énergie.

départ proposée. Ces développements sont présentés dans la référence [40]. Cette méthode reste néanmoins limitée à des impulsions attosecondes isolées, et d'une durée suffisamment faible pour pouvoir considérer le balayage en énergie comme étant linéaire. De plus, ce type de traitement n'a encore jamais été utilisé sur des données expérimentales, probablement du fait de sa grande sensibilité au bruit.

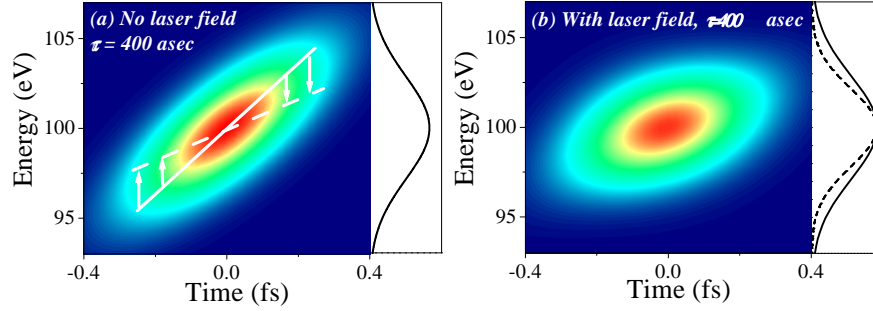


FIG. 1.8 – Illustration de la méthode de tomographie chronocyclique. Distributions temps-énergie (de type Wigner) et spectres en énergie du paquet d'ondes électroniques produit par une impulsion attoseconde à dérive de fréquence positive, de durée 400 as, avec et sans champ laser. Les flèches blanches en (a) schématisent le balayage ($\partial W/\partial t < 0$) induit par le champ laser sur l'énergie des photoélectrons ($\lambda = 800$ nm, $I = 0.25$ TW/cm²). En (b), dans le panneau de droite, les spectres en énergie avec (courbe en pointillés) et sans champ laser (ligne pleine) sont comparés. Cette figure illustre clairement pourquoi le champ laser peut aboutir à une diminution de la largeur du spectre de photoélectrons dans le cas d'impulsions à dérive de fréquence.

1.4 La mesure des trains d'impulsions attosecondes : une autre perspective

Dans le courant de l'année 2001, quelques mois seulement après la première expérience du groupe autrichien décrite ci-dessus, paraît un deuxième article essentiel pour la métrologie attoseconde [8]. Cet article, issu d'une collaboration conduite par Pierre Agostini et Harm Müller, présente la mesure de la structure temporelle "moyenne" des impulsions attosecondes d'un train. L'objet de cette section est de présenter la technique de mesure utilisée, inspirée d'une étude réalisée quelques années plus tôt par le groupe d'Alfred Maquet [44], et appelée RABBIT pour "Reconstruction of Attosecond Beatings By Interference of Two-Photon Transitions".

Cet article est paru alors que mes collègues d'Ottawa et moi-même étions en pleine analyse de la méthode de la caméra à balayage attoseconde. Ce travail a suscité chez moi un très vif intérêt, et a fortement influencé la suite de mes recherches. En effet, il semblait alors n'y avoir aucun lien évident entre le principe d'une mesure RABBIT et celui de la méthode de la caméra à balayage attoseconde, alors même que le phénomène physique sous-jacent était exactement le même. Il était clairement essentiel de trouver un lien entre ces deux approches. Dans la suite de cette partie, nous verrons où cette démarche m'a finalement mené.

Principe de RABBITT

La méthode RABBITT est adaptée au cas de trains d'impulsions attosecondes toutes identiques, et permet d'obtenir la structure temporelle de ces impulsions. Cette structure est déterminée par l'enveloppe du spectre harmonique et par la phase relative des différentes harmoniques. Un simple spectromètre XUV suffit à mesurer l'intensité spectrale, et RABBITT permet de mesurer les phases relatives.

Cette technique constitue une extension de la méthode des "side-bands" décrite dans la section 1.1.1. L'idée est toujours de mesurer les pics satellites dans le spectre de photoélectrons résultant de la photoionisation à deux couleurs d'atomes, *mais à présent avec un champ laser dont l'énergie de photon est exactement la moitié de l'intervalle d'énergie entre les harmoniques* (Fig. 1.9). Bien que cela puisse paraître non trivial à réaliser, la génération d'harmoniques dans le gaz se prête naturellement à cette technique, car seules les harmoniques impaires du laser sont le plus souvent générées (pour un milieu de génération centro-symétrique) : en utilisant le même laser pour la génération et la mesure temporelle, on se trouve donc naturellement dans une situation de type RABBITT. Ce point technique a joué un rôle essentiel dans le succès de cette méthode. La méthode suppose également que l'on se place à intensité laser suffisamment basse pour que seules des transitions à un photon laser entrent en jeu.

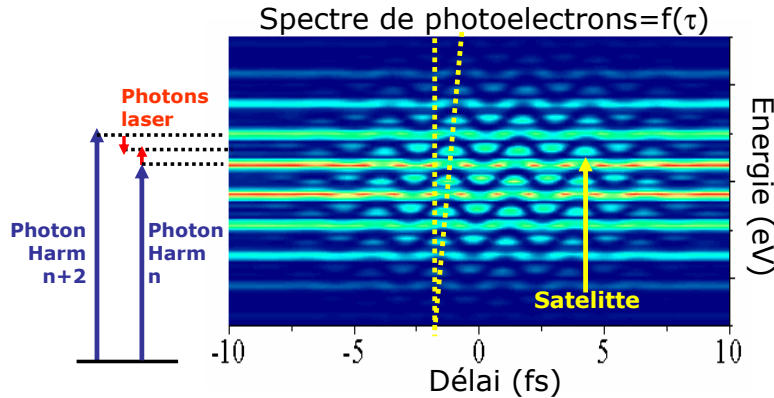


FIG. 1.9 – Principe de la technique RABBITT. Les flèches verticales représentent les différentes transitions photoniques mises en jeu pour un pic satellite donné. La carte de couleur représente le spectre de photoélectron en fonction du délai entre le champ laser et le train d'impulsions attosecondes. On y observe clairement l'oscillation des pics satellites à deux fois la fréquence du laser. Dans cet exemple, les impulsions attosecondes ont une dérive de fréquence linéaire, qui se traduit par une variation linéaire en fréquence de la phase d'oscillation des satellites (lignes pointillées).

Dans ces conditions, deux transitions à deux photons (XUV + laser) mènent à une même énergie finale (Fig. 1.9) : absorption d'un photon de l'harmonique N, suivi de l'absorption d'un photon laser (transition (1)), ou bien absorption d'un photon de l'harmonique N+2, suivie de l'émission d'un photon laser (transition (2)). L'amplitude de probabilité du pic satellite est la somme des amplitudes de probabilité de ces deux transitions : des interférences se produisent entre ces deux "chemins", dont le résultat dépend évidemment de la phase relative $\phi_{N+2} - \phi_N$ des deux harmoniques impliquées.

Afin de déterminer cette phase relative, l'amplitude du pic satellite est mesurée en fonction du délai τ entre le champ laser et le train attoseconde. Sachant que la phase du photon laser varie en $\omega_L \tau$, la phase de la transition (1) est $\phi_1 = \omega_L \tau + \phi_N$, et celle de la transition (2) $\phi_2 = -\omega_L \tau + \phi_{N+2}$. Du fait de l'interférence entre (1) et (2), l'intensité I_{N+1} du pic satellite situé entre les harmoniques N et $N + 2$ varie donc en :

$$I_{N+1} \propto \cos(2\omega_L \tau + \phi_{N+2} - \phi_N) \quad (1.3)$$

Il suffit donc de mesurer l'intensité de tous les satellites en fonction de τ , et de déterminer les phases de leurs oscillations, pour connaître les phases relatives de toutes les harmoniques.

Importance de la technique

Depuis 2001, cette technique a été utilisée avec succès dans un grand nombre de laboratoires (cf. section 1.7 pour quelques exemples). Il s'agit sans aucun doute de la méthode de mesure attoseconde la plus répandue. Elle est cependant limitée au cas des trains, et suppose en outre que l'on peut considérer toutes les impulsions de ce train comme ayant des structures temporelles à peu près identiques.

Au niveau du principe, il n'apparaît pas de lien évident avec la méthode de la caméra à balayage. Puisque des phénomènes d'interférence entrent en jeu, il est clair que le modèle semi-classique précédemment décrit ne peut permettre d'analyser cette technique. Alors que je travaillais à Ottawa, cette constatation nous a poussés à chercher un modèle quantique simple pour la photoionisation à deux couleurs. Il s'est avéré que ce modèle était déjà existant depuis la fin des années 1970, et nous avons pu l'exploiter très rapidement grâce à l'expertise des théoriciens Misha Ivanov et Gennady Yudin sur les phénomènes d'interaction laser-atome en champs forts. Ce modèle fait l'objet de la section suivante.

1.5 Modèle quantique de la photoionisation en présence d'un laser

Nous analysons tout d'abord la relation entre un champ attoseconde XUV et le paquet d'ondes électroniques qu'il génère dans le continuum en photoionisant un atome, puis nous présentons un modèle quantique simple [36, 37] qui permet de calculer l'effet d'un champ laser de basse fréquence sur le spectre en énergie de ce paquet d'ondes. Le lien entre ce modèle et le modèle semi-classique est ensuite présenté. Ce même modèle permet également de comprendre comment le champ laser peut dans certains cas mener à l'apparition de pics satellites (méthode de corrélation croisée, méthode RABBIT), et dans d'autres à un élargissement du spectre de photoémission (méthode de la caméra attoseconde).

1.5.1 Photoionisation avec le champ XUV seul

Théorie des perturbations au premier ordre

Nous considérons l'ionisation d'un atome par un champ attoseconde seul, et nous

nous plaçons dans l'approximation de l'électron actif unique. Selon la théorie des perturbations au premier ordre, aux temps longs, tels que le champ attoseconde s'annule, l'amplitude de transition $a_{\mathbf{v}}$ entre l'état fondamental de l'atome et un état final du continuum $|\mathbf{v}\rangle$ de quantité de mouvement \mathbf{v} , est donnée par

$$a_{\mathbf{v}} = -i\mathbf{d}_{\mathbf{v}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{E}_X(t) e^{i(W+I_p)t} \quad (1.4)$$

$$= -i\mathbf{d}_{\mathbf{v}} \tilde{\mathbf{E}}_X(\omega = W + I_p) \quad (1.5)$$

où $W = \mathbf{v}^2/2$ est l'énergie de l'état final du continuum. $\mathbf{E}_X(t)$ est le champ électrique XUV, $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$ est l'élément de matrice de transition dipolaire entre l'état fondamental et l'état du continuum $|\mathbf{v}\rangle$, I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome, et enfin $\tilde{\mathbf{E}}_X(\omega)$ est la transformée de Fourier de $\mathbf{E}_X(t)$. Soulignons à nouveau que toutes les équations sont données ici en unités atomiques.

Le paquet d'ondes électroniques : une réplique du champ attoseconde

L'équation (1.5) établit la relation entre le champ attoseconde et le paquet d'ondes électroniques qu'il génère dans le continuum lorsqu'il ionise un atome. Elle montre que la spectre de photoélectron $a_{\mathbf{v}}$ est directement lié au spectre du champ attoseconde, à la fois en amplitude et en phase.

Ces deux spectres peuvent différer en amplitude si $|\mathbf{d}_{\mathbf{v}}|$ dépend de \mathbf{v} . La section efficace d'ionisation est généralement bien connue, ce qui permet de corriger cette dépendance si nécessaire. Même si cela n'était pas le cas, l'amplitude spectrale du champ attoseconde peut être mesurée indépendamment au moyen d'un spectromètre XUV.

Les deux spectres peuvent également différer en phase, du fait d'une possible dépendance de la phase de $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$ avec \mathbf{v} , qui peut notamment se produire au voisinage de résonances dans le continuum. Si cette dépendance en phase est négligeable, ou bien connue grâce à la théorie ou l'expérience, la phase spectrale de l'impulsion attoseconde peut être directement déduite de celle du paquet d'ondes électroniques.

Ces deux types de correction dues à $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$ ont été négligées dans les premières mesures attosecondes, du fait de la largeur spectrale limitée (typiquement quelques eV) des champs attosecondes alors générés. Des mesures plus récentes mettent en jeu des largeurs spectrales beaucoup plus grandes (quelques dizaines d'eV), et il n'est pas certain que ces effets liés à la réponse atomique, puissent toujours être négligés. Aucune étude détaillée sur ce point n'a cependant été réalisée à ce jour. Nous reviendrons ultérieurement sur les problèmes que cela pourrait poser en terme de métrologie.

Moyennant ces restrictions, le paquet d'ondes électroniques peut être en première approximation considéré comme une réplique du champ attoseconde qui ionise l'atome. Sa caractérisation temporelle complète fournit donc toute l'information sur la structure temporelle du champ attoseconde, à condition que la réponse de l'atome utilisé comme convertisseur soit connue. Nous allons à présent étudier l'effet d'un champ laser de basse fréquence sur le spectre de photoélectron, qui est la clef de cette caractérisation du paquet d'ondes.

1.5.2 Modèle quantique "SFA" en présence de champ laser

Approximation SFA

Pour traiter le cas de la photoionisation XUV en présence d'un champ laser, nous utilisons, en plus de l'approximation de l'électron actif unique, l'approximation dite de champ fort ("Strong Field Approximation" ou SFA en anglais) [45]. Cette dernière consiste à négliger l'effet du potentiel ionique sur le mouvement de l'électron après ionisation, et s'avère particulièrement adaptée à la situation qui nous intéresse ici [40].

Moyennant ces approximations, une fois que le champ attoseconde et le champ laser s'annulent, l'amplitude de transition vers l'état final du continuum $|\mathbf{v}\rangle$, pour un délai τ entre les deux champs, est donnée par

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \, \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i[I_p t - \int_t^{+\infty} dt' \mathbf{p}^2(t')/2]} \quad (1.6)$$

$\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ est la quantité de mouvement instantanée de l'électron libre dans le champ laser, avec $\mathbf{A}(t)$ le potentiel vecteur de ce champ dans la jauge de Coulomb. Soulignons qu'en l'absence de champ laser, cette équation se ramène à la théorie des perturbation au premier ordre (Eq. (1.5)) par rapport au champ XUV.

Interprétation qualitative

Si cette équation peut être démontrée formellement à partir de l'équation de Schrödinger, elle a cependant une interprétation qualitative très simple, qu'il est intéressant de décrire ici.

$a_{\mathbf{v}}$ est la somme des amplitudes de probabilité de toutes les trajectoires électroniques menant à la même quantité de mouvement finale \mathbf{v} . L'intégrale sur t dans l'équation (1.6) rend ainsi compte du fait que le champ XUV peut injecter l'électron dans le continuum à tout temps t , avec une amplitude de probabilité égale au champ électrique XUV à cet instant t , multipliée par l'élément de transition de matrice dipolaire qui correspond à la vitesse juste après l'ionisation. Sachant que la vitesse de l'électron est \mathbf{v} une fois que le champ laser s'annule ($\mathbf{A}(t) = 0$), cette vitesse doit être $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ du fait de la conservation de la quantité de mouvement canonique de l'électron dans le champ laser. L'exponentiel dans l'intégrale rend compte de la phase de ce processus, qui est la somme de la phase $I_p t$ accumulée dans l'état fondamental jusqu'au temps t d'ionisation, et de la phase ensuite accumulée dans le continuum entre t et l'instant de détection ($t \rightarrow +\infty$). Dans l'approximation SFA, ce dernier terme de phase est la phase de Volkov, c'est-à-dire, au signe près, l'intégrale de l'énergie instantanée d'un électron libre dans le champ laser, $\mathbf{p}^2(t')/2$, depuis l'instant d'ionisation jusqu'au temps d'observation.

La champ laser : un modulateur de phase électronique

On peut aboutir à une meilleure compréhension intuitive de l'effet du champ laser sur le paquet d'ondes en réarrangeant les différents termes de l'intégrale dans l'exponentiel

de l'équation (1.6) :

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\phi(t)} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i(W+Ip)t} \quad (1.7)$$

$$\phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' (\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t') + \mathbf{A}^2(t')/2) \quad (1.8)$$

La comparaison des équation (1.5) et (1.7) montre que le *principal* effet du champ laser est d'induire une modulation de phase temporelle $\phi(t)$ sur le paquet d'ondes électroniques généré dans le continuum par le champ XUV. Du fait du produit scalaire $\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}$ dans l'équation (1.8), les photoélectrons doivent être observés dans une direction donnée pour que cette modulation de phase soit bien définie. Dans ces conditions, le champ laser agit sur le paquet d'ondes électroniques exactement comme un modulateur de phase conventionnel utilisé en optique agit sur des impulsions lumineuses : il peut donc être considéré comme un *modulateur de phase électronique ultra-rapide*.

Comme nous le verrons ultérieurement, cette analyse du modèle quantique, bien qu'élémentaire, établit une connexion avec les concepts de la métrologie femtoseconde [40], ce qui m'a permis de développer de nouvelles techniques de mesure attosecondes, beaucoup plus puissantes que les premières méthodes proposées.

Complément : cas d'un champ polarisé linéairement

En pratique, la plupart des méthodes de mesure attoseconde peuvent être implémentées avec un champ laser polarisé linéairement. Dans ce cas, une expression simple de $\phi(t)$ est obtenue si l'enveloppe \mathbf{E}_0 du champ laser $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t) \cos(\omega_L t)$ est suffisamment longue pour utiliser l'approximation de l'enveloppe lentement variable, de telle sorte que $\mathbf{A}(t) = -\mathbf{E}_0(t) \sin(\omega_L t)/\omega_L$. On obtient alors :

$$\begin{aligned} \phi(t) &= \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t) \\ \phi_1(t) &= - \int_t^{+\infty} dt U_p(t) \\ \phi_2(t) &= (\sqrt{8WU_p(t)}/\omega_L) \cos \theta \cos \omega_L t \\ \phi_3(t) &= -(U_p(t)/2\omega_L) \sin(2\omega_L t) \end{aligned} \quad (1.9)$$

où $U_p(t) = E_0^2(t)/4\omega_L^2$ est l'énergie pondéromotrice de l'électron dans le champ laser au temps t . L'angle d'observation θ est défini comme dans le cas du modèle semi-classique.

$\phi_1(t)$ varie lentement dans le temps, c'est-à-dire à l'échelle de l'enveloppe de l'impulsion laser. Au contraire, $\phi_2(t)$ et $\phi_3(t)$ oscillent respectivement à la fréquence du laser et à sa seconde harmonique. La figure 1.10 illustre la dépendance temporelle typique de $\phi(t)$ pour différents angles d'observation. Soulignons qu'autour de $\theta = 0$, l'amplitude $\Delta\phi$ de la modulation de phase atteint des valeurs élevées ($\Delta\phi > 2\pi$), même à intensité laser modérée, du fait du facteur \sqrt{W} apparaissant dans $\phi_2(t)$.

1.5.3 Lien entre les modèles quantique et semi-classique

Voyons pour finir le lien entre ce modèle et le modèle semi-classique précédemment décrit. Ce lien peut être analysé formellement par la méthode de la phase stationnaire,

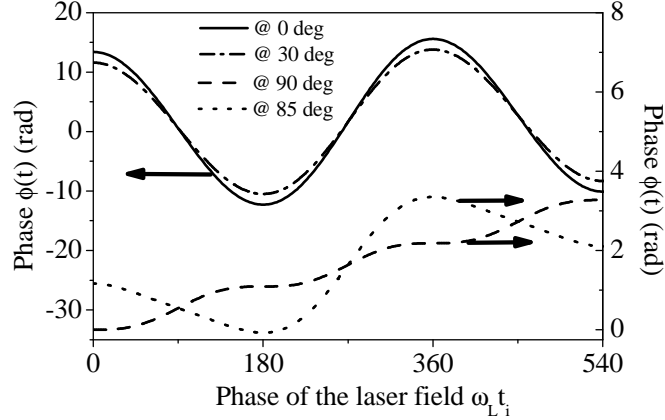


FIG. 1.10 – Modulation de phase $\phi(t)$ induite sur le paquet d'ondes électroniques, dans différentes directions d'observation θ , par un champ laser polarisé linéairement ($I = 9 \text{ TW/cm}^2$, $U_p \approx 0.54 \text{ eV}$, longueur d'onde 800 nm), pour une énergie finale d'électron de $W = 100 \text{ eV}$. Remarquer les différentes échelles verticales utilisées pour les différentes courbes (flèches). Dans les directions $\theta = 0$ et 30° , une modulation de grande amplitude est induite, même à cette intensité laser très modérée.

qui permet d'intégrer la première intégrale de l'équation (1.6) [46]. Ce calcul montre que les trajectoires du modèle semi-classique correspondent aux "chemins quantiques" de l'intégrale (1.6) pour lesquelles la phase totale $\chi(t) = \phi(t) + (W + I_p)t$ est stationnaire en temps ($\partial\chi/\partial t = 0$). Cependant, une discussion qualitative plus simple mais équivalente est possible, décrite ci-dessous.

Cas d'impulsions XUV courtes devant le cycle optique du laser

Si l'impulsion XUV est courte devant la période du champ laser, on peut utiliser dans l'équation (1.7-1.8) un développement linéaire de la modulation de phase $\phi(t)$ par rapport à t . Or une modulation de phase linéaire en temps sur le paquet d'ondes électroniques induit simplement un décalage de son spectre. Ce décalage est donné par $\delta W = W - W_0 = -\partial\phi/\partial t$. En résolvant cette équation par rapport à W , on obtient exactement l'expression (1.2), c'est-à-dire la même énergie que celle fournie par le modèle semi-classique.

En d'autres termes, la modulation en énergie $W(t)$ (figure 1.5) donnée par le modèle semi-classique, et la modulation de phase $\phi(t)$ (figure 1.10) donnée par le modèle quantique SFA, sont simplement reliées par une dérivée temporelle. Ces deux modèles sont donc strictement équivalents dans la limite d'impulsions XUV beaucoup plus courtes que la période laser.

La modèle semi-classique fournit ainsi une base intuitive simple pour comprendre le modèle quantique. Comme nous l'avons vu, il montre que la trajectoire classique d'un photoélectron, depuis son ion parent jusqu'au détecteur, dépend de son instant d'ionisation à l'intérieur du cycle optique du laser (figure 1.4) : d'un point de vue quantique, la phase accumulée le long de cette trajectoire est modulée temporellement par le champ laser. Cette modulation est justement la phase $\phi(t)$ donnée par l'équation

(1.8) du modèle quantique.

Cas d'impulsions XUV plus longues que le cycle optique du laser

L'élément manquant du modèle semi-classique, par rapport au modèle quantique, est le phénomène d'interférence dans le domaine spectral, entre des parties du paquet d'ondes électroniques émises à différents temps, mais ayant la même énergie finale. Puisque le champ laser induit une modulation périodique de l'énergie sur le paquet d'ondes électroniques, de telles interférences se produisent de façon inévitable pour des champs XUV de durée comparable ou supérieure à la période optique du laser -comme par exemple des trains d'impulsions attosecondes ou des impulsions XUV femtosecondes. Par conséquent, ce régime ne peut être décrit quantitativement par le modèle semi-classique, bien qu'une partie importante de la physique sous-jacente soit la même.

Ainsi, pour des impulsions XUV suffisamment longues, ces interférences donnent lieu à l'apparition de satellites dans le spectre de photoélectron, qui sont précisément les "side-bands" dont nous avons parlé au début de ce chapitre. En transformant l'équation (1.7), on obtient une formule relativement simple pour calculer l'amplitude de ces satellites. Pour un champ laser $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t)$, l'amplitude de transition $a_{\mathbf{v}}$ est donnée pour un champ XUV quelconque par :

$$a_{\mathbf{v}} = \sum_{m,n=-\infty}^{+\infty} (-1)^m i^n J_m(M) J_n(N) \tilde{R}_X(W + I_p + \omega_{mn}), \quad (1.10)$$

où W est à nouveau l'énergie finale du photoélectron, $J_k(z)$ sont les fonctions de Bessel, $M = U_p/2\omega_L$, $N = 2\sqrt{U_p}(\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_L)/\omega_L$, $\omega_{mn} = \omega_L(2M + 2m + n)$ (avec \mathbf{e}_L le vecteur unitaire dans la direction de polarisation du laser), et $\tilde{R}_X(\omega)$ est la transformée de Fourier de $R_X(t) = \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t)$.

On voit directement sur cette équation que pour une impulsion XUV suffisamment longue (c'est-à-dire telle que la largeur de $\tilde{R}_X(\omega)$ est inférieure à ω_L), le spectre de photoélectron consiste en un ensemble de "side-bands". On peut distinguer deux types de satellites, correspondant aux termes $J_m(M)$ et $J_n(N)$, induits respectivement par les termes $\phi_1(t)$ et $\phi_2(t)$ de la modulation de phase $\phi(t)$. La première famille de satellites s'étend jusqu'à $|m| \sim M$ avec un espacement en énergie de $2\omega_L$, alors que la seconde s'étend jusqu'à $|n| \sim N$ avec un espacement de ω_L .

Il y a clairement une correspondance entre ces deux familles de satellites, et les deux derniers termes de l'équation (1.2) du modèle semi-classique. Ces termes classiques permettent de calculer le nombre de pic satellites induits, c'est-à-dire l'enveloppe du spectre obtenu dans le régime quantique où des interférences interviennent. Cette analyse montre, comme attendu, que la prédiction $W \neq W_0$ dans le modèle semi-classique, est l'équivalent classique de l'absorption, émission et diffusion de photons laser par le photoélectron.

Complément : la caméra attoseconde : où sont les photons lasers ?

Nous pouvons à présent également analyser en terme de transitions photoniques le cas d'une impulsion XUV plus courte que le cycle optique du laser, correspondant à une mesure de type

caméra attoseconde. Dans ce cas, les pics satellites de l'équation (1.10) ont une largeur telle qu'ils se recouvrent spectralement. Le spectre total est alors le résultat des interférences entre ces différents satellites, et ce résultat dépend de la phase du laser au moment de la photo-ionisation. En choisissant cette phase de façon appropriée, ces interférences peuvent conduire à un élargissement spectral tel que celui utilisé dans la méthode de la caméra attoseconde. On comprend ainsi comment on passe physiquement d'un spectre présentant des pics satellites (Méthodes RABBIT par exemple), à un spectre simplement élargi sous l'effet du laser (méthode de la caméra attoseconde). Ce dernier cas peut donc également s'analyser en termes d'absorption et d'émission de photons lasers, mais cette analyse dans le domaine des fréquences n'est clairement pas la plus appropriée.

1.6 Méthodes pour une caractérisation complète de champs attosecondes

Nous avons à présent décrit les premières méthodes de mesure attoseconde développées, ainsi que les théories semi-classique et quantique qui permettent de les analyser. À partir de ces différents éléments, j'ai ensuite proposé différentes méthodes de mesure attoseconde plus élaborées, "attosecond SPIDER" [47] (article en annexe B2) et "FROG CRAB" [18] (article en annexe B3), qui font l'objet de cette section. Ces deux techniques utilisent les paquets d'ondes électroniques comme intermédiaires, pour transposer aux impulsions attosecondes les deux méthodes de mesure temporelle les plus utilisées et les plus performantes dans la gamme femtoseconde, que sont SPIDER [48] et FROG [28].

1.6.1 SPIDER attoseconde

Interférométrie spectrale avec référence

Considérons deux impulsions de spectres $s_1(\omega) = \sqrt{S_1(\omega)}e^{i\varphi_1(\omega)}$ et $s_2(\omega) = \sqrt{S_2(\omega)}e^{i\varphi_2(\omega)}$. Les fonctions $S_i(\omega)$ et $\varphi_i(\omega)$ sont respectivement les intensités et les phases spectrales. Si ces deux impulsions sont envoyées de façon colinéaire dans un spectromètre (supposé parfaitement résolvant), avec un délai Δt entre elles, l'intensité spectrale totale mesurée $S(\omega)$ est donnée par :

$$S(\omega) = |s_1(\omega) + e^{i\omega\Delta t}s_2(\omega)|^2 \quad (1.11)$$

$$= S_1(\omega) + S_2(\omega) + 2\sqrt{S_1(\omega)S_2(\omega)}\cos[\omega\Delta t + \varphi_1(\omega) - \varphi_2(\omega)] \quad (1.12)$$

On observe donc dans $S(\omega)$ des franges spectrales, de périodicité $\approx 2\pi/\Delta t$. L'interférométrie spectrale consiste à utiliser la position de ces franges pour déterminer la différence de phase spectrale $\Delta\varphi(\omega) = \varphi_1(\omega) - \varphi_2(\omega)$ entre les deux impulsions : cette technique peut être considérée comme l'équivalent spectro-temporel de l'holographie usuelle. Un algorithme très simple, basé sur des transformations de Fourier et un filtrage adapté, peut être utilisé pour extraire $\Delta\varphi(\omega)$ de l'interférogramme mesuré [49].

L'interférométrie spectrale est une technique extrêmement versatile. Elle peut en particulier être utilisée pour déterminer la structure temporelle d'impulsions lumineuses. Cela suppose cependant de disposer d'une impulsion de référence, dont la phase spectrale

$\varphi_1(\omega)$ est connue et dont le spectre englobe celui de l'impulsion à caractériser. En mesurant un interférogramme $S(\omega)$ entre ces deux impulsions, on peut alors déterminer la phase $\varphi_2(\omega)$ de l'impulsion inconnue et, connaissant son intensité spectrale (mesurée à l'aide d'un spectromètre), calculer sa structure temporelle par simple transformation de Fourier.

Néanmoins, il arrive très souvent qu'aucune impulsion de référence adaptée ne soit disponible. L'idée de la technique SPIDER (acronyme de "Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction") est d'utiliser l'interférométrie spectrale sans passer par une impulsion de référence [48].

SPIDER : interférométrie spectrale auto-référencée

Dans la technique SPIDER, les impulsions qui interfèrent sont l'impulsion à caractériser, de spectre $s_1(\omega) = \sqrt{S(\omega)}e^{i\varphi(\omega)}$, et une réplique de cette impulsion, légèrement décalée en fréquence, de spectre $s_2(\omega) = s_1(\omega + \Delta\omega)$. L'interférogramme permet alors de déterminer $\Delta\varphi(\omega) = \varphi(\omega) - \varphi(\omega + \Delta\omega)$, fonction à partir de laquelle on peut calculer $\varphi(\omega)$, par simple intégration en fréquence (moyennant l'approximation $\Delta\varphi(\omega) \approx d\varphi/d\omega \cdot \Delta\omega$), ou par des méthodes d'ordre plus élevé de concaténation.

La technique SPIDER n'est donc rien d'autre que de l'interférométrie spectrale auto-référencée. La *principale* difficulté de cette technique est d'induire le décalage en fréquence $\Delta\omega$, qui doit typiquement être de l'ordre de 10% de la largeur spectrale de l'impulsion à mesurer. Dans le visible ou proche visible, ceci est réalisé par des techniques d'optique non-linéaire³. Comme souligné précédemment, il est extrêmement difficile de faire de même pour les impulsions attosecondes, et d'autres solutions doivent donc être trouvées dans ce cas.

Transposition aux impulsions attosecondes

J'ai identifié une solution possible à ce problème en tentant d'établir un lien entre la technique RABBITT et la caméra attoseconde. Comme nous l'avons vu, la technique RABBITT se comprend très aisément en terme de transitions à deux photons. Cependant, lorsque j'ai pris connaissance de cette technique, j'ai naturellement essayé de l'analyser au moyen du modèle semi-classique de la section 1.2, que j'utilisais alors avec mes collègues d'Ottawa pour mettre au point la méthode de la caméra attoseconde.

Pour ce faire, j'ai considéré le cas simplifié de deux impulsions attosecondes seulement, séparées de la moitié d'une période optique T_L du laser d'habillage, comme dans le cas des trains d'impulsions auxquels est appliquée la méthode RABBITT. En analysant ce cas dans le domaine temporel avec le modèle semi-classique, on s'aperçoit immédiatement (Fig. 1.11) que, pour la plupart des délais et dans la direction de polarisation du laser ($\theta = 0 \pmod{\pi}$), un décalage en énergie est induit entre les deux paquets d'ondes créés par les deux impulsions attosecondes successives. Ce décalage peut être calculé au moyen de l'équation (1.2) du modèle semi-classique. La question se posait alors de savoir si ce décalage en énergie pouvait ou non être utilisé pour effectuer une mesure

³par exemple par somme de fréquence de deux répliques de l'impulsion, décalées temporellement, avec une troisième impulsion à dérive de fréquence

SPIDER sur ces paquets d'ondes, et ainsi déterminer la phase spectrale de l'impulsion attoseconde de départ.

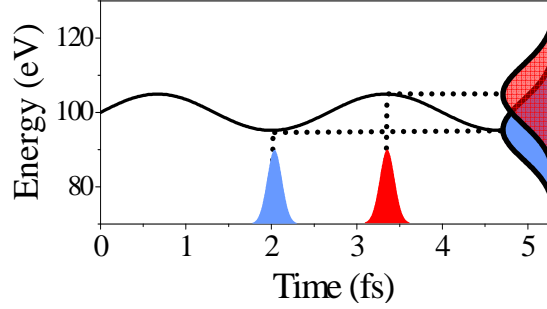


FIG. 1.11 – Principe de la technique SPIDER attoseconde. Les gaussiennes rouge et bleue sur l'axe des temps représentent les paquets d'ondes électroniques générées par les deux répliques d'une impulsion attoseconde, décalées d'un demi-cycle optique du laser ($T_L/2 = 1.3 \text{ fs}$ à 800 nm). Les deux gaussiennes sur l'axe vertical représentent les spectres de ces deux paquets en présence du laser. La technique SPIDER attoseconde utilise les interférences spectrales (non représentées) entre ces deux paquets. La sinusoïde correspond à l'énergie finale de l'électron en fonction du temps, en présence du laser, calculée au moyen du modèle semi-classique pour $\theta = 0$, $W = 100 \text{ eV}$, $I = 0.5 \text{ TW/cm}^2$, et $\lambda = 800 \text{ nm}$. Pour une mesure de ce type, les répliques de l'impulsion attoseconde sont synchronisées avec le champ laser de telle sorte que le balayage en énergie soit nul.

Répondre à cette question nécessitait de pouvoir prendre en compte les interférences entre les deux paquets d'ondes, et donc d'avoir recours à un traitement quantique du processus. C'est pour cette raison que nous nous sommes alors tournés vers le modèle quantique de la section 1.5, qui a ensuite également été exploité pour l'analyse de la caméra attoseconde.

Validation de la méthode par un calcul quantique

La figure 1.12 présente les spectres de photoélectrons calculés dans la direction $\theta = 0$, à l'aide du modèle quantique de la section 1.5, pour une situation de type SPIDER telle que représentée sur l'insert en haut à gauche. On observe effectivement des franges d'interférence entre les deux paquets d'ondes électroniques. Comme attendu dans une mesure SPIDER, les positions de ces franges dépendent de la phase spectrale $\varphi(\omega)$ de l'impulsion attoseconde (inserts de la figure 1.12 (b)). L'algorithme usuel de la technique SPIDER peut être utilisé pour extraire cette phase de l'interférogramme. Le résultat de cette procédure apparaît sur la figure 1.12(c), où l'on observe un excellent accord entre la phase reconstruite à partir de l'interférogramme et la phase spectrale exacte. Ces simulations valident donc le principe de la technique SPIDER attoseconde [47] (Annexe B2).

Gamme de validité en durée

Afin de ne pas induire de distorsion du paquet d'ondes lors du décalage en énergie, l'impulsion attoseconde doit être suffisamment courte devant la période du champ laser,

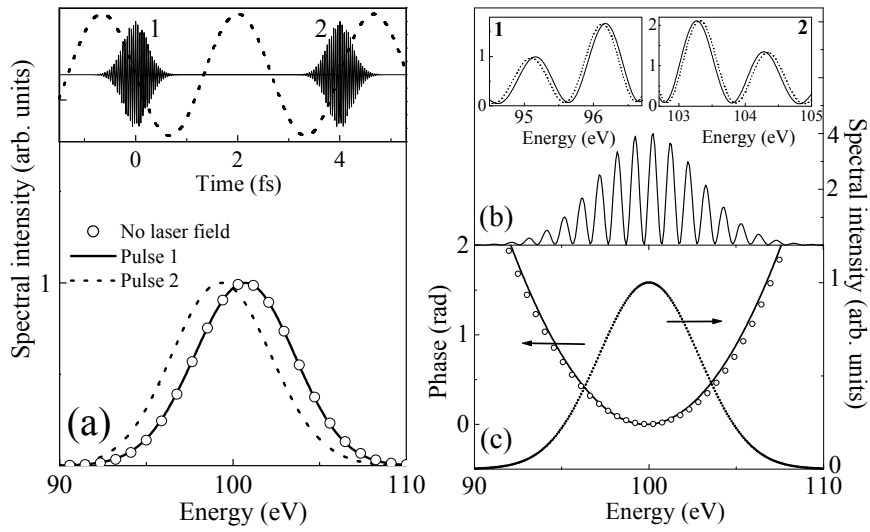


FIG. 1.12 – Simulation d'une mesure SPIDER attoseconde à l'aide du modèle quantique SFA. (a) Spectres de photoélectrons dans la direction $\theta = 0$, générés par chacune des deux impulsions XUV indiquées dans l'insert supérieur (impulsions à dérive de fréquence de 400 as, largeur spectrale 6.5 eV, $\Omega_X - I_p = 100$ eV) en présence d'un champ laser ($\lambda = 800$ nm, $I = 10^{-2}$ TW/cm², décalage en énergie $\Delta W \approx 1.4$ eV). Les cercles creux montrent le spectre obtenu en l'absence de champ laser (décalé en énergie pour permettre une comparaison avec les spectres en présence de laser). La ligne en tirets dans l'insert montre le champ électrique du laser. Remarquer que les impulsions sont séparées de 1.5 cycles optiques du laser, afin d'obtenir suffisamment de franges dans la largeur spectrale de l'impulsion. (b) Spectre de photoélectrons obtenu lorsque les deux impulsions excitent successivement un atome en présence du champ laser. Les inserts 1 et 2 comparent les motifs d'interférences obtenus avec des impulsions de même spectre, limitées par transformée de Fourier (270 as, ligne pleine) et à dérive de fréquence (400 as, ligne en tirets). (c) Comparaison entre la phase spectrale déterminée à partir de l'interférogramme SPIDER (cercles) et la phase spectrale exacte $\varphi(W)$ (ligne continue). La ligne en pointillés montre l'intensité spectrale.

pour que les modulations de phase $\phi(t)$ induite sur les paquets d'ondes puissent être considérées comme linéaires en temps. Dans ce cas, comme expliqué dans la section 1.5.3, cette modulation donne lieu à un simple décalage en énergie $\delta W = -\partial\phi/\partial t$ du paquet d'ondes électroniques. Les simulations numériques montrent que pour un champ laser à 800 nm, la durée maximale des impulsions auxquelles cette technique peut être appliquée est de l'ordre de 400 as [40]-ce qui correspond précisément au cas de la figure 1.12. Au delà de cette limite, un champ d'habillage de plus grande longueur d'onde devient nécessaire.

Il n'y a pas *a priori* de limite *fondamentale* à la résolution temporelle de la technique SPIDER attoseconde. En utilisant des conditions physiques tout à fait réalistes, nous avons démontré qu'elle pourrait permettre la caractérisation temporelle complète d'impulsions attosecondes de l'ordre de l'unité atomique de temps, soit 25 as [47]. Une analyse détaillée de la méthode montre qu'une limitation pratique pourrait provenir des fluctuations de délai entre le champ laser et le champ attoseconde, qui induisent un brouillage des franges d'autant plus fort que l'intensité laser est élevée. Ce brouillage pourrait devenir critique pour des impulsions extrêmement courtes, qui nécessitent d'induire un décalage en énergie élevé, et donc d'utiliser des intensités lasers importantes.

Avantages de la technique

Comparée à la méthode de la caméra attoseconde et à la plupart des autres techniques de mesure attoseconde, cette technique présente deux avantages majeurs.

Tout d'abord, elle offre la meilleure résolution temporelle actuellement disponible pour une impulsion unique. Soulignons également que pour une durée d'impulsion attoseconde fixée, elle nécessite une intensité laser largement inférieure à celle requise pour une mesure de type caméra attoseconde. En effet, pour SPIDER attoseconde, il est simplement nécessaire d'induire un décalage spectral d'une fraction de la largeur spectrale $\Delta\omega$ de l'impulsion à mesurer, alors que la caméra attoseconde exige d'induire un élargissement spectral comparable à $\Delta\omega$.

Son second avantage est de permettre en principe une caractérisation temporelle en un seul tir, puisqu'elle ne nécessite pas de varier un paramètre tel que le délai. En pratique cependant, il n'est pas évident qu'il soit possible de mesurer le spectre de photoélectrons en un seul tir avec un rapport signal sur bruit suffisamment bon, même si cette technique est *a priori* moins sensible au bruit que la caméra attoseconde (ou son extension, la tomographie chronocyclique, voir section 1.3).

Malgré ces atouts, le champ d'application de SPIDER attoseconde reste encore limité : elle ne s'applique qu'à des impulsions attosecondes uniques, de durée inférieure à environ 400 as, et dont le spectre est connexe.

Implémentation expérimentale

L'une des difficultés à résoudre pour mettre en oeuvre cette technique est de trouver une façon de générer deux répliques, décalées d'un temps Δt très petit (typiquement moins d'une femtoseconde), de l'impulsion attoseconde à caractériser. Comme souligné précédemment, on sait fabriquer relativement peu d'éléments optiques pour la gamme

XUV du spectre électromagnétique. Construire un interféromètre de type Michelson dans cette gamme est donc extrêmement difficile.

Une alternative relativement simple consisterait à réfléchir l'impulsion à caractériser sur un miroir à échelon (ou à créneaux), avec une profondeur de modulation de l'ordre de 100 nm, et à utiliser l'ordre 0 du champ réfléchi par ce réseau : les deux surfaces de réflexion différentes produisent alors chacune une réplique, qui ont entre elles un délai bien défini à l'échelle du cycle optique de l'impulsion attoseconde (pour une optique supposée parfaite).

Du fait de cette difficulté notable, cette technique expérimentale n'a pas encore été démontrée expérimentalement. Elle a cependant été envisagée pour caractériser en mono-coup les impulsions XUV femtosecondes générées par le laser à électrons libres FLASH à Hamburg. Pour cela, un champ électromagnétique d'habillage de grande longueur d'onde doit être utilisé -en pratique, l'émission térahertz du laser à électrons libres. A ma connaissance, cette expérience ambitieuse ⁴ est toujours en préparation.

Complément : configurations possibles

Différentes configurations sont possibles pour cette technique. La principale condition à vérifier est que le délai τ avec le champ laser, et l'intervalle temporel Δt entre les deux impulsions, soient tels que les deux paquets d'ondes électroniques subissent sous l'effet du champ laser deux décalages en énergie δW différents, $\delta W(\tau) \neq \delta W(\tau + \Delta t)$. Il est en outre essentiel de n'induire aucune distorsion des paquets d'ondes en les décalant en énergie, telles que celles qui seraient par exemple induites par un balayage en énergie excessif. Pour cela, il est préférable d'utiliser des délais τ avec le laser tels que $\partial^2 \phi / \partial t^2 = \partial \delta W / \partial t = 0$ pour $t = \tau$ et $t = \tau + \Delta t$.

Ces deux conditions déterminent les temps d'arrivée optimaux des impulsions attosecondes par rapport au champ laser. Ainsi, pour $\theta = \pi/2$, on obtient $\omega_L \tau = 0$ et $\omega_L \Delta t = 2\pi(n/2 + 1/4)$, ce qui donne lieu à un décalage en énergie de $2U_p$. Pour $\theta = 0$, on arrive à $\omega_L \tau = \pm\pi/2$ et $\omega_L \Delta t = 2\pi(n + 1/2)$, avec un décalage en énergie qui vaut alors $\sqrt{32W_0 U_p}$.

Soulignons que pour tout angle autre que $\theta \approx \pi/2 \pmod{\pi}$, le champ laser induit inévitablement une distorsion résiduelle du spectre du paquet d'ondes, du fait de la dépendance en W de la modulation de phase $\phi(t)$ et donc du décalage en énergie $\delta W(t)$. Cette distorsion peut donner lieu à des erreurs systématiques dans le phase reconstruite à partir de l'interférogramme. Cependant, de telles erreurs peuvent facilement être corrigées en modifiant l'algorithme SPIDER habituel, de façon à prendre en compte ces distorsions systématiques et prédictibles. Malgré cette complication, un très sérieux avantage des mesures dans la direction $\theta = 0$ est d'autoriser une très grande acceptance angulaire dans la collection des électrons (typiquement $\pm 30^\circ$), due au fait que $\partial \delta W / \partial \theta = 0$ dans cette direction. Cette acceptance est au contraire très fortement réduite dès que l'on s'approche de $\theta = \pi/2$.

Complément : SPIDER attoseconde tout optique ?

Une autre schéma SPIDER particulièrement séduisant à première vue a été proposée dans la référence [50]. Il consiste à réaliser une mesure SPIDER directement sur les impulsions lumineuses XUV, sans passer par l'intermédiaire des électrons. Pour obtenir les deux répliques du champ XUV décalées en temps et en fréquence, l'idée proposée est d'effectuer la génération de

⁴une excellente résolution spectrale est notamment requise pour la mesure du spectre de photoélectrons, du fait de l'utilisation de délais dans la gamme femtoseconde et non attoseconde

ce champ avec deux répliques de l'impulsion laser, elle-même décalées en temps, ainsi qu'en fréquence d'une quantité $\delta\omega$. Pour l'harmonique n , on produit alors deux impulsions XUV identiques (en supposant que le milieu de génération n'a pas évolué entre les deux impulsions), décalées en temps et en fréquence de $n\delta\omega$. On peut ainsi réaliser une mesure SPIDER pour cette harmonique : il s'agit alors d'une mesure temporelle *femtoseconde*. Cette technique a effectivement été démontrée expérimentalement [51].

Il a été suggéré dans la référence [50] que cette méthode pourrait aussi être utilisée pour des mesures à l'échelle attoseconde. Plusieurs problèmes très sérieux se posent néanmoins, qui empêchent une telle extension.

Dans le cas d'un train, le spectre présente entre les harmoniques des intervalles sans aucun signal, ou bien avec un signal extrêmement faible, où il n'est donc pas possible de mesurer $\Delta\varphi(\omega)$. Ceci est généralement totalement redibitoire pour une mesure SPIDER, qui nécessite une mesure sur un intervalle de fréquence connexe, afin de pouvoir déduire $\varphi(\omega)$ de $\Delta\varphi(\omega)$ par concaténation ou intégration. Dans la référence [50], ce problème a été résolu en utilisant un régime de génération d'harmonique où un signal non-négligeable subsiste entre les harmoniques. Ceci est beaucoup plus difficile expérimentalement, et restreint la méthode à des cas très particuliers. De ce fait, aucun train n'a encore été mesuré de cette façon.

Dans le cas d'impulsions attosecondes uniques, la méthode ne s'applique tout simplement pas. En effet, dans tous les schémas de génération d'impulsion unique, il n'y a clairement pas de relation entre la fréquence centrale de l'impulsion laser et celle de l'impulsion attoseconde. Décaler l'impulsion laser en fréquence ne résulte donc pas en un simple décalage de l'impulsion attoseconde, et le principe de la technique n'est plus valide.

1.6.2 FROG CRAB

Le développement de SPIDER attoseconde a fait émerger l'idée qu'il était éventuellement possible de transposer au régime attoseconde les techniques de mesure temporelle les plus performantes développées pour les impulsions femtosecondes, *en utilisant les paquets d'ondes électroniques comme intermédiaires*.

La technique la plus utilisée depuis plus de 10 ans pour caractériser les impulsions femtosecondes est FROG (acronyme de "Frequency-Resolved Optical Gating"). Dès 2001, Rick Trebino, l'un des inventeurs de cette technique, intuït que les mesures de spectres de photoélectrons en fonction du délai pourraient être équivalentes à une mesure FROG. Au cours de l'analyse de la méthode de la caméra attoseconde, mon collègue Jiro Itatani émet également l'idée qu'une mesure FROG pourrait être réalisée en utilisant un champ laser polarisé circulairement, et en mesurant le spectre de photoélectrons dans toutes les directions du plan de polarisation. Cependant une telle mesure, bien que possible en principe, est en pratique extrêmement difficile.

Après avoir décrit le principe général de FROG [28], nous verrons comment cette technique peut effectivement être généralisée aux champs attosecondes arbitrairement complexes, de façon finalement très simple [18], comme l'avait intuït Rick Trebino.

Principe général de FROG

La technique FROG consiste à découper l'impulsion lumineuse à caractériser en "tranches temporelles", au moyen d'une porte temporelle $G(t)$, et à mesurer le spectre de chacune de ces tranches (Fig. 1.13). Cette mesure fournit un ensemble de données à deux

dimensions, appelé spectrogramme ou trace FROG. Celui-ci est donné par l'expression :

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} \right|^2 \quad (1.13)$$

où $E(t)$ est le champ de l'impulsion à caractériser, et τ est le délai variable entre la porte et l'impulsion.

Différents algorithmes itératifs peuvent alors être utilisés pour extraire à la fois $E(t)$ et $G(t)$ de $S(\omega, \tau)$. Ces algorithmes, que nous ne décrivons pas ici (cf. par exemple [28]), sont essentiellement des algorithmes de reconstruction de la phase spectrale de la fonction $E_{sig}(t, \tau) = G(t)E(t - \tau)$, dont seul le module $\sqrt{S(\omega, \tau)}$ de la transformée de Fourier par rapport à t est connu expérimentalement. Une fois $E_{sig}(t, \tau)$ connue (en amplitude et en phase), on obtient très simplement $E(t)$ et $G(t)$ en utilisant les relations $G(0)E(t) = E_{sig}(0, -t)$ et $E(0)G(t) = E_{sig}(t, t)$.

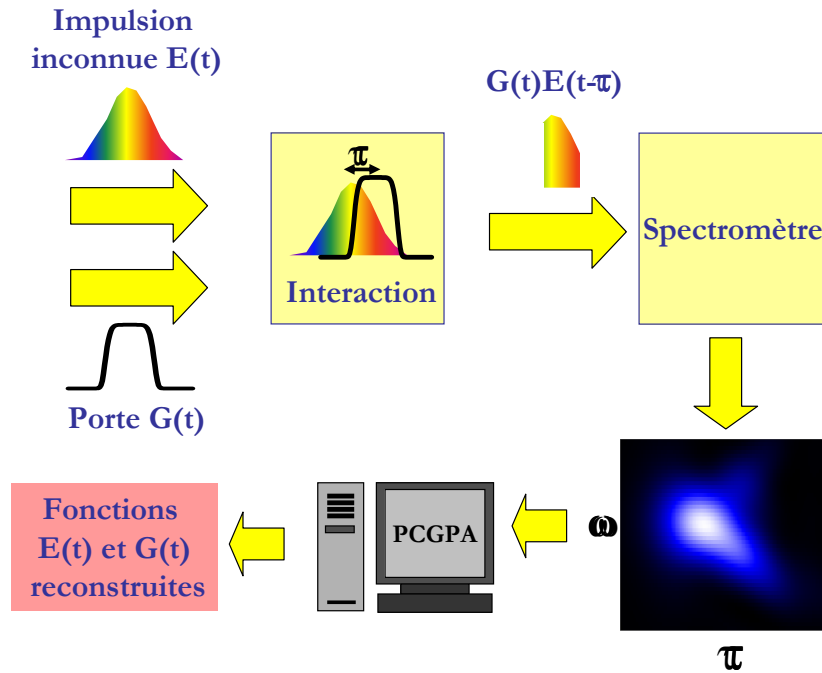


FIG. 1.13 – Principe général d'une mesure FROG. Il s'agit ici d'une mesure de type blind-FROG.

Obtention de la porte $G(t)$ dans la gamme visible

Les deux points cruciaux pour implémenter cette technique sont, premièrement, de générer une porte $G(t)$ adaptée à l'impulsion à mesurer, et deuxièmement, de faire "interagir" la porte et l'impulsion de façon à obtenir le spectrogramme de l'équation (1.13). Dans la gamme visible ou proche visible, FROG est généralement implémenté en utilisant l'impulsion inconnue elle-même comme fonction porte, que l'on fait interagir

avec l'impulsion à mesurer par le biais d'effets optiques non-linéaires. Dans cette gamme spectrale, c'est clairement la façon la plus simple et naturelle d'obtenir une porte suffisamment brève pour l'impulsion à mesurer. La porte temporelle est alors une fonction connue de l'impulsion à mesurer, $G(t) = F[E(t)]$. Par exemple, dans le cas de la version dite SHG (Second Harmonic Generation) de FROG, la plus répandue, on a simplement $G(t) = E(t)$. Cette relation entre les deux fonctions est alors prise en compte comme une contrainte supplémentaire dans l'algorithme de reconstruction.

Cependant, en principe, la porte peut tout à fait être une fonction inconnue sans aucune relation avec l'impulsion à mesurer. Les mesures de ce type sont appelées "blind FROG" [52]. De façon presque surprenante, les algorithmes de reconstruction utilisés dans cette situation sont plus simples, car ils ont une contrainte en moins à intégrer. Un algorithme particulièrement efficace et élégant est appelé PCGPA [52], pour "principal component generalized projections algorithm". Cet algorithme très simple utilise uniquement des transformations de Fourier, des produits de matrices et de vecteurs, ainsi que des permutations de vecteurs dans des matrices.

Ainsi, en 2002 [53], Christophe Dorrer démontre qu'il est possible de caractériser des impulsions visibles picosecondes au moyen de blind-FROG, en utilisant pour créer la porte un modulateur électro-optique ultra-rapide. Ce modulateur permet de générer une porte $G(t)$, essentiellement d'amplitude, qui est suffisamment courte pour des mesures dans la gamme picoseconde. En appliquant PCGPA, il parvient ainsi à reconstruire à la fois la porte $G(t)$ et l'impulsion $E(t)$. C'est en assistant à un séminaire de C. Dorrer sur ce travail que j'ai compris qu'il était finalement très simple de généraliser FROG aux champs attosecondes, comme nous allons le voir à présent.

Transposition aux impulsions attosecondes : FROG CRAB

Revenons à l'équation (1.7) du modèle quantique, qui donne le spectre de photoémission induit par un champ XUV en présence d'un champ laser :

$$a(\mathbf{v}, \tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\phi(t)} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i(W + Ip)t} \quad (1.14)$$

On constate immédiatement une analogie de forme entre $|a(\mathbf{v}, \tau)|^2$ et l'expression (1.13) du spectrogramme FROG :

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} \right|^2$$

Néanmoins, une particularité essentielle de l'équation (1.14) est liée au fait que la fonction $G(t) = e^{i\phi(t)}$ est une "porte de phase pure", c'est-à-dire que son module est indépendant du temps. Or, d'un point de vue intuitif, il semble à première vue que la méthode FROG nécessite plutôt des portes d'amplitude pures, $G(t) = f(t) \in \mathbb{R}$, afin de découper temporellement la fonction $E(t)$ comme indiqué sur la figure 1.13. Il n'en est rien : d'un point de vue mathématique, l'expression du spectrogramme reste la même quelle que soit $G(t)$, et il est tout à fait possible d'appliquer les algorithmes de reconstruction à un spectrogramme obtenu avec un porte de phase pure. De fait, de telles

mesures ont été réalisées pour des impulsions femtosecondes dans la référence [54]. Ces spectrogrammes sont simplement plus difficiles à interpréter qualitativement que ceux obtenus avec des portes d'amplitude pures⁵.

Cette comparaison suggère donc que la mesure du spectre de photoémission en fonction du délai τ avec le champ laser, est finalement une mesure de type FROG sur le paquet d'ondes électroniques $\mathbf{d}_p \mathbf{E}_X(t)$ généré par le champ attoseconde dans le continuum. Dans cette mesure, *le champ laser agit comme une porte de phase quantique sur le paquet d'ondes*. Cette mesure FROG devrait permettre de caractériser totalement en amplitude et en phase le paquet d'ondes, et ainsi le champ attoseconde de départ (section 1.5.1).

Cette idée a été validée par Yann Mairesse (dans le cadre de sa thèse effectuée au sein du groupe Attophysique du SPAM [55]) et moi-même, en appliquant l'algorithme PCGPA à des traces calculées numériquement à partir de l'équation (1.14), avec $\phi(t)$ donnée par l'équation (1.10), pour différents types de champs attosecondes [18]. Ceci nous a également permis d'analyser cette technique plus en détail. Conformément à la coutume dans le domaine de la métrologie d'impulsions courtes, nous avons baptisé cette méthode d'un nom emprunté à la zoologie, FROG CRAB, qui est l'acronyme de "Frequency-Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts".

Exemple de traces FROG CRAB

Voyons à présent quelques exemples d'application de cette technique, qui permettent de mieux en comprendre le mode de fonctionnement.

Impulsion attoseconde isolée

La figure 1.14 (a) présente la trace FROG CRAB obtenue pour une impulsion attoseconde unique à dérive de fréquence (phases spectrales de 2^{ième} et 3^{ième} ordre) de 315 as. Sous cette trace sont présentés le champ laser utilisé comme porte de phase, et le spectre (amplitude et phase) de l'impulsion attoseconde. Ces fonctions d'entrées sont comparées aux reconstructions obtenues par l'application de l'algorithme PCGPA à la trace CRAB. On constate que l'accord est excellent, ce qui valide la méthode pour ce type de champ attoseconde.

Sur cette trace, on observe que la largeur du spectre de photoémission varie avec le délai entre les deux champs. Cette variation de largeur est due à l'effet de balayage en énergie induit par le champ laser, comme nous l'avons vu dans le cadre de la méthode de la caméra attoseconde. C'est essentiellement dans ces variations de largeur et de forme du spectre qu'est encodée l'information sur la structure temporelle de l'impulsion. Finalement, le principe sous-jacent est donc le même que celui de la caméra attoseconde (ou de sa généralisation, la tomographie chronocyclique) : les deux principales différences résident dans la redondance de l'information (mesure du spectre pour de nombreux

⁵Soulignons que dans les mesures FROG usuelles, la porte est le plus souvent une porte à la fois de phase et d'amplitude (par exemple, $G(t) = E(t)$ dans SHG FROG). L'une des rares exceptions est le "Polarization Gating FROG", où $G(t) = |E(t)|^2$

délais, correspondant à différentes vitesses de balayage), et, surtout, dans la méthode utilisée pour traiter les données.

Train d'impulsions attosecondes

La figure 1.14 (b) présente le cas d'une mesure CRAB d'un train d'impulsions attosecondes non identiques de période temporelle $T_L/2$, où la porte de phase est créée par un laser de période T_L (situation identique à une mesure RABBITT). Ces impulsions sont plus courtes au centre du train (250 as) qu'au bord (400 as), ce qui est une situation réaliste expérimentalement. Le train reconstruit par PCGPA à partir de la trace est comparé au train exact sur le graphe du bas : encore une fois, l'accord est excellent, ce qui montre que la méthode s'applique également à ce type de champ attoseconde.

On constate que la trace de la figure 1.14 (b) est très similaire à celle obtenue dans une mesure RABBITT. De fait, comme dans RABBITT, l'information sur la structure temporelle des impulsions attosecondes est, pour partie, encodée dans la phase des oscillations des pics satellites. La différence essentielle avec RABBITT repose dans le fait qu'au lieu d'utiliser uniquement ces oscillations à la fréquence $2\omega_L$, c'est toute la trace qui est exploitée par l'algorithme. L'information supplémentaire ainsi obtenue - par exemple via l'enveloppe femtoseconde des pics satellites, ou leur inclinaison dans l'espace (τ, ω) - permet de traiter le cas de trains d'impulsions non identiques, ce qui était impossible avec RABBITT. Pour la même raison, contrairement à RABBITT, il n'y a pas de restriction sur l'intensité laser à utiliser, et des transitions à plusieurs photons lasers ne posent pas de problème : l'algorithme PCGPA est capable de traiter toutes les situations.

Champ attoseconde complexe

Pour finir, la figure 1.14 (c) présente le cas d'une mesure FROG CRAB d'impulsion attoseconde complexe, dont le spectre (amplitude et phase) est donné dans le panneau à droite de la trace. Les reconstructions obtenues pour l'impulsion attoseconde et le champ laser sont comparées aux fonctions d'entrées dans les graphes inférieurs, avec encore une fois un excellent accord. On discerne dans la trace CRAB deux zones, séparées par une transition complexe. La première, à basse énergie, présentent des pics satellites oscillants à la fréquence $2\omega_L$: dans cette zone, l'information est encodée de façon essentiellement interférométrique, comme dans une mesure RABBITT. Dans la seconde zone, à haute énergie, l'information est au contraire obtenue par l'effet de balayage en énergie, comme dans la figure 1.14 (a). Au total, l'information sur la structure de l'impulsion est donc encodée de façon relativement complexe, et aucune méthode autre que FROG CRAB ne permet à ce jour d'analyser de telles traces.

Intérêt de la méthode

Les exemples précédents illustrent les atouts majeurs de cette méthode, que l'on peut résumer de la façon suivante :

- (i) FROG CRAB s'applique à tout type de champ attoseconde, de l'impulsion unique jusqu'aux trains complexes. Elle permet en outre une caractérisation temporelle

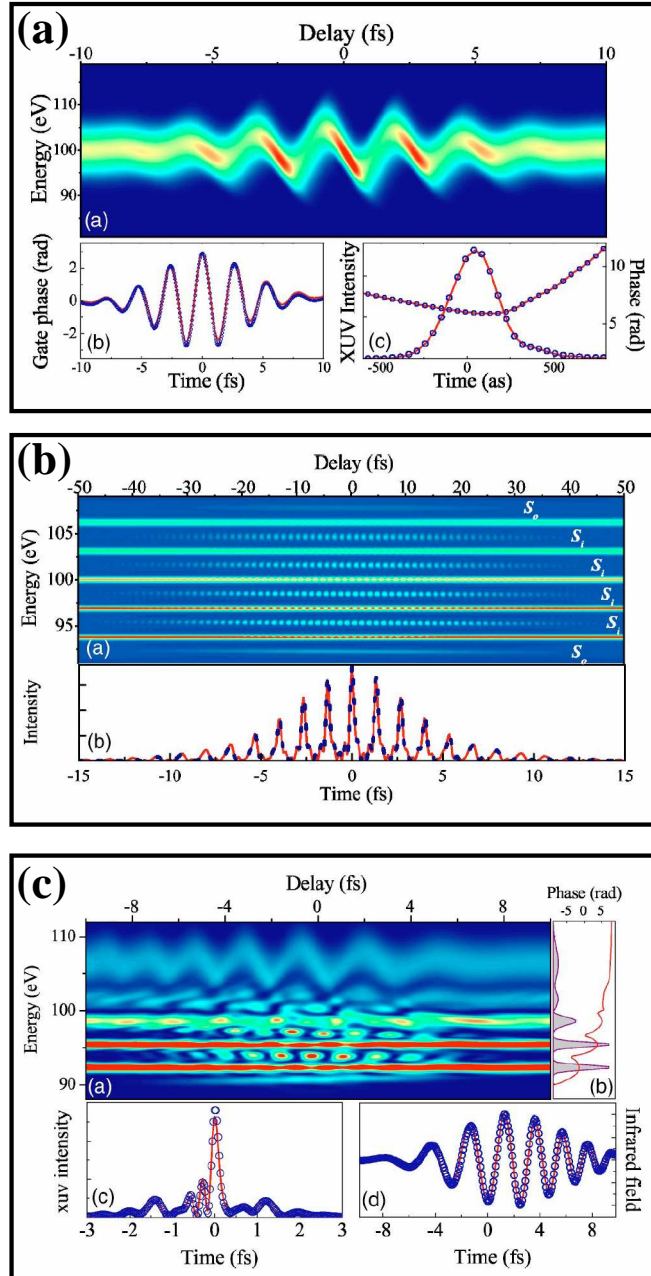


FIG. 1.14 – . Exemples de traces FROG CRAB simulées et des reconstructions obtenues avec PCGPA. Le cas (a) correspond au cas d'impulsion attoseconde isolée relativement simple, le cas (b) à un train d'impulsions attosecondes non identiques, et le cas (c) à une impulsion attoseconde unique complexe, entourée de pics satellites non négligeables. Les courbes en rouge correspondent aux fonctions d'entrée, utilisées pour calculer les traces CRAB à partir du modèle SFA. Les points bleus montrent les reconstructions obtenues en appliquant PCGPA à ces traces.

complète (reconstruction du champ électrique de l'impulsion). Elle est à ce jour la seule méthode de caractérisation complète à présenter une telle versatilité. Remarquons que la méthode est également valide en principe pour des impulsions XUV femtosecondes.

- (ii) D'un point de vue conceptuel, FROG CRAB permet enfin d'établir un lien entre les différentes méthodes de mesure précédemment démontrées, notamment la caméra attoseconde et RABBITT : toutes ces techniques peuvent finalement être considérées comme des mesures de type FROG CRAB, dans lesquelles seule une partie de l'information est exploitée.
- (iii) FROG CRAB présente également un grand nombre d'avantages pratiques, qui en font une excellente méthode de caractérisation. Etant dérivée de FROG, elle bénéficie notamment de tous les atouts de cette technique, souvent considérée comme la meilleure méthode de caractérisation dans la gamme femtoseconde. Cette méthode présente notamment une grande robustesse au bruit, due à la forte redondance d'information dans la trace. Soulignons également que l'algorithme ne converge généralement pas de façon satisfaisante en cas d'erreurs dans la trace, ce qui permet de détecter d'éventuels artefacts expérimentaux. De plus, un seul et unique algorithme, bien établi et relativement simple, peut être utilisé systématiquement pour traiter toutes les configurations de mesure. Enfin, la méthode fournit également une reconstruction du champ laser, ce qui permet de tester le résultat obtenu en comparant cette donnée à une mesure indépendante de ce champ par une méthode femtoseconde standard. Une étude théorique récente a également démontré une très grande robustesse vis-à-vis d'un grand nombre d'artefacts expérimentaux (fluctuations d'intensité laser ou de délai par exemple) [56].

Complément : problèmes non résolus

En dépit de ces atouts majeurs, plusieurs problèmes restent à résoudre pour rendre cette technique plus rigoureuse. En examinant plus précisément l'équation (1.14) ainsi que l'expression (1.10) de la modulation de phase $\phi(t)$, on constate deux différences essentielles avec une mesure FROG standard :

- (i) La porte G n'est pas simplement une fonction de t , mais aussi d'énergie W . Cette dépendance provient de la variation en \sqrt{W} du terme $\phi_2(t)$ de $\phi(t)$.
- (ii) Le terme de moment dipolaire $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}$, avec $\mathbf{p}(t) = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$, peut également présenter une dépendance à la fois en t et W , selon la variation en \mathbf{p} de la fonction $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$.

De telles dépendances ne se produisent pas dans une mesure FROG, et ne sont pas prises en compte par les algorithmes usuels tels que PCGPA.

Dépendance en énergie de la porte

L'erreur induite par l'effet (i) sur le champ reconstruit est faible, tant que la largeur ΔW du spectre est faible devant sa fréquence centrale W_0 , et cela d'autant plus que W_0 est grand. Cet effet sera donc négligeable pour les mesures réalisées loin du seuil d'ionisation de l'atome ($W \gg I_p$)⁶. Pour preuve, cette dépendance en W a été prise en compte pour le calcul des traces de la figure 1.14, qui fournissent néanmoins de très fidèles reconstructions des champs.

⁶On remarque que cette condition est également requise pour garantir la validité de l'approximation SFA. Il est donc à première vue toujours préférable d'effectuer les mesures dans ces conditions.

Si nécessaire, cet effet (i) peut cependant être éliminé en collectant les électrons à 90° de la direction de polarisation du laser, où la contribution de $\phi_2(t)$ à la modulation de phase $\phi(t)$ s'annule. Cette approche présente cependant un sérieux inconvénient d'un point de vue expérimental, lié au fait que $\phi(t)$ varie très rapidement avec θ dans cette direction : pour obtenir une modulation de phase bien définie et ainsi une trace CRAB pertinente, il est indispensable d'utiliser un très faible angle de collection, ce qui réduit fortement le signal de photoélectrons.

Une autre alternative serait de prendre en compte cette dépendance en W de la porte G dans l'algorithme de reconstruction. Il semble qu'un tel développement ait effectivement été réalisé en 2006-2007 dans l'équipe de Chang-Hee Nam en Corée du Sud, mais aucune description précise de ce travail n'a jamais été publiée à ma connaissance. Ainsi, en dépit des efforts de plusieurs autres équipes pour mettre au point un algorithme prenant en compte les spécificités de FROG CRAB [57, 58], ce problème spécifique, essentiellement mathématique, reste irrésolu à ce jour.

Effet du moment de transition dipolaire

L'effet (ii) est plus difficile à analyser, car il faut pour cela connaître la dépendance en \mathbf{p} de $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$, qui est bien évidemment fonction de l'atome utilisé, de la direction d'observation par rapport à la polarisation XUV, et de la gamme d'énergie considérée. En principe, ce terme pourrait être inclu dans une nouvelle porte $\tilde{G}(t) = \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}G(t)$. Cet effet pourrait alors être traité correctement par un algorithme de reconstruction prenant en compte la dépendance en W de $\tilde{G}(t)$. Dans les simulations de la figure 1.14 et des références [18, 40], ainsi que dans les démonstrations expérimentales de cette technique (cf section 1.7), cet effet a été négligé en supposant le moment dipolaire indépendant de \mathbf{p} , ce qui est encore une fois raisonnable si $W \gg I_p$.

Résolution en énergie du spectromètre à électrons

D'un point de vue expérimental, un point potentiellement critique est la résolution du spectromètre à électrons utilisé. Une bonne résolution (≤ 100 meV typiquement) est nécessaire dès lors que l'on souhaite mesurer des trains, afin de résoudre correctement les structures des harmoniques du spectre. En pratique, le spectromètre induit généralement un élargissement non négligeable de ces structures spectrales, qui peut mener à des erreurs dans la reconstruction. Il serait donc souhaitable de prendre cet effet en compte dans la procédure de reconstruction. Le fait que cette résolution dépend en général de l'énergie des électrons (dans un spectromètre à temps de vol par exemple) rend ce point non trivial. Rick Trebino et ses collaborateurs ont récemment proposé un nouvel algorithme de reconstruction intégrant ce type de correction [57], mais son efficacité n'est pas vraiment démontrée à ce jour.

Au delà de l'approximation SFA ?

Enfin, la validité de la méthode FROG CRAB a été démontrée dans l'approximation SFA. Néanmoins, il est tout à fait possible qu'elle soit encore pertinente dans des situations où cette approximation n'est a priori plus satisfaisante. Une façon de la vérifier serait par exemple de calculer des traces CRAB non plus au moyen de l'équation (1.6), mais à l'aide d'un code du type "Time-Dependent Schrödinger Equation", et d'appliquer l'algorithme de reconstruction à ces traces. On pourrait alors espérer non seulement obtenir une reconstruction de l'impulsion attoseconde, mais également obtenir des informations sur l'effet des corrections coulombiennes sur l'interaction. J'ai initié en 2006-2007 une telle étude en collaboration avec Kenichi Ishikawa, alors à l'Université de Tokyo, et nous avons obtenu des premiers résultats très encourageants. Nous n'avons cependant pas pu pousser cette étude à son terme par manque de temps.

1.7 Conclusions et perspectives

Dans cette partie, j'ai essentiellement présenté la théorie des méthodes de mesure attoseconde, car ce sont sur ces aspects que mes recherches ont porté. Je voudrais maintenant conclure en soulignant brièvement les spectaculaires avancées qui ont été réalisées dans le même temps sur ce sujet au niveau expérimental. Couplées aux développements théoriques présentés ici, ces avancées rendent aujourd'hui possible la mesure précise de la structure temporelle du *champ électrique* d'impulsions attosecondes, que ce soit sous forme de train ou isolées - mesure qui aurait été totalement impensable il y a seulement 10 ans.

Mesures d'impulsions uniques

La figure 1.15 présente l'évolution, depuis 2001, des mesures expérimentales de spectres de photoélectrons en fonction du délai entre une impulsion attoseconde unique et une impulsion laser. La plupart de ces mesures ((a-c) et (e)) sur des impulsions uniques ont été réalisées par le groupe de Ferenc Krausz, à l'Université technique de Vienne en Autriche, puis au Max Planck Institute for Quantum Optics, en Allemagne. La mesure (d) a quant à elle été effectuée par le groupe de Mauro Nisoli en Italie.

Le figure 1.15(a) correspond à la première mesure quasi-attoseconde de 2001 déjà présentée dans la section 1.1.2 [34]. Les oscillations d'énergie de l'électron avec le délai n'étaient pas encore mesurées. Ces oscillations furent mesurées dès fin 2001 [7], toujours perpendiculairement à la direction de polarisation du laser, après amélioration du montage expérimental (Figure 1.15(b)). A ce stade, l'élargissement du spectre induit par le laser n'est pas encore dû à l'effet de caméra à balayage attoseconde, mais à des effets géométriques. Il permet néanmoins d'estimer la durée de l'impulsion attoseconde unique à 650 ± 150 as. Il a fallu attendre 2004, et les remarquables avancées sur la stabilisation de la phase relative enveloppe-porteuse de lasers amplifiés [59], pour voir la première véritable mesure de type caméra à balayage attoseconde [41, 60] (Fig.(1.15(c))) sur une impulsion de 250 as, réalisée cette fois-ci dans la direction de polarisation du laser.

La première mesure de type FROG CRAB est réalisée sur des impulsions de 130 as dès 2006 [61] (Fig. 1.15(d)), un peu plus d'un an seulement après que la méthode ait été proposée. Grâce à cette technique, ce n'est pas simplement la durée de l'impulsion qui est évaluée, mais la structure complète du champ électrique qui est mesurée - à l'exception de la phase relative enveloppe-porteuse, qui reste expérimentalement hors de portée à ce jour. Une seconde mesure de ce type a été publiée en 2008 (Fig. 1.15(e)), démontrant les impulsions les plus courtes jamais générées, soit 80 as environ [21].

Mesures de trains attosecondes

Durant cette période, des progrès très significatifs sont également réalisés sur la mesure de trains d'impulsions attosecondes, en particulier grâce aux travaux des groupes du CEA Saclay en France (voir par exemple [62]) et de l'Université de Lund en Suède (voir par exemple [63]). Ainsi, la figure 1.16 (images (a-b)) compare les premières mesures RABBITT de 2001 [8] à celles publiées 2 ans plus tard par le groupe de Saclay [62]. Ces derniers résultats ont eu une grande importance, car ils ont fourni la première

mesure de la dérive de fréquence des impulsions attosecondes générées dans les gaz, apportant ainsi une nouvelle confirmation expérimentale directe du modèle de génération mis au point dans les années 90 [19, 45]. En 2006 enfin sont réalisées les premières mesures FROG CRAB sur des trains, par le groupe de Chang-Hee Nam en Corée du sud [64] (Figure 1.16(c)).

Cas plus complexes

Enfin, en 2008, le groupe de H.Kapteyn et M.Murnane, en collaboration avec R.Trebino, a appliqué FROG CRAB à un cas que seule cette technique permet de bien traiter, celui d'un champ attoseconde complexe, constitué d'environ 3 impulsions attosecondes à dérive de fréquence [65]. Plus récemment, ces mêmes équipes ont effectué des mesures CRAB sur des impulsions uniques en utilisant un algorithme de reconstruction spécifique [57]. D'après ces travaux, cet algorithme permettrait des reconstructions CRAB avec un laser non stabilisé en phase relative enveloppe-porteuse. De mon point de vue, cette approche est risquée et devra être validée par des études très détaillées.

Quels défis pour la métrologie attoseconde ?

Pour l'heure, FROG CRAB fournit une excellente solution pour la caractérisation complète et précise de champs attosecondes même complexes. A mesure que la durée des impulsions va décroître, et donc la largeur spectrale augmenter, il deviendra essentiel de combler les faiblesses actuelles de la méthode, indiquées dans le complément de la section 1.6.2.

Il serait également très intéressant d'implémenter expérimentalement la technique SPIDER attoseconde, qui présente l'avantage de ne pas nécessiter de varier le délai. Des mesures beaucoup plus rapides -éventuellement monocoups- seraient ainsi possibles pour des impulsions uniques. En disposant d'une deuxième méthode de mesure relativement différente, on pourrait ainsi tester la cohérence des mesures réalisées et se faire une meilleure idée de leur validité : n'oublions pas en effet que toutes ces techniques reposent pour l'heure sur le modèle SFA de la photoionisation.

Enfin, comme nous le verrons dans la seconde partie de ce mémoire, de nouvelles générations de sources attosecondes sont actuellement en cours de développement. Les spécificités de certaines de ces nouvelles sources -bas taux de répétition, ou énergie de photon élevée par exemple- risquent de parfois rendre difficile l'application des méthodes décrites dans ce chapitre, basées sur la spectroscopie de photoélectrons. De nouvelles méthodes devront sans nul doute être développées pour en caractériser l'émission. En particulier, des méthodes entièrement optiques, ne passant pas par l'intermédiaire d'électrons ou ions, seraient particulièrement souhaitables. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre suivant.

Complément : autres méthodes de caractérisation attoseconde existantes

Soulignons que d'autres méthodes de mesure attoseconde, basées sur des phénomènes physiques relativement différents, ont été proposées ou même développées depuis 2001. La plus significative consiste à mesurer une autocorrélation non-linéaire du champ attoseconde, en utilisant comme effet non-linéaire l'ionisation à deux photons d'atomes ou de molécules par les

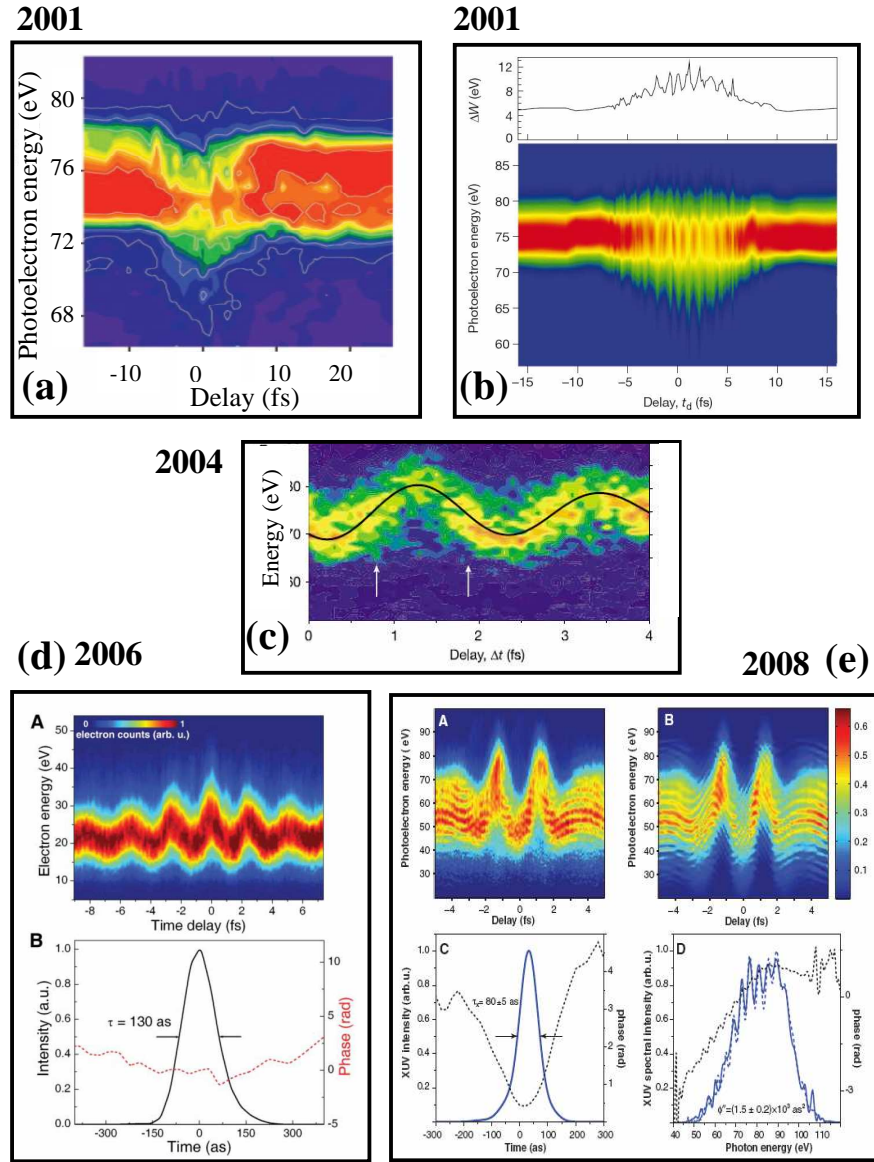


FIG. 1.15 – Evolution des mesures d'impulsions attosecondes uniques depuis 2001. Les deux cadres du bas correspondent aux premières mesures FROG CRAB réalisées, et montrent également les impulsions attosecondes reconstruites (en amplitude et en phase) par cette technique.

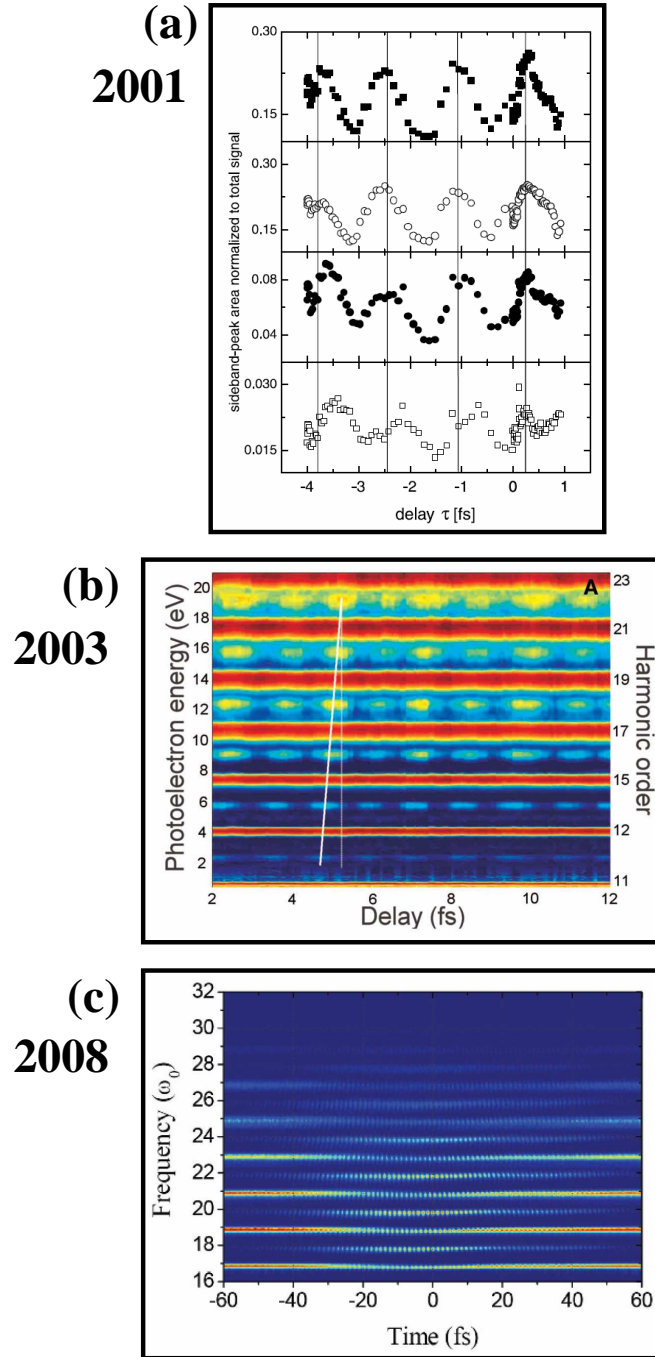


FIG. 1.16 – Evolution des mesures de trains d'impulsions attosecondes depuis 2001. Le cadre du bas correspond à la première mesure FROG CRAB réalisée sur un train.

harmoniques. Cette méthode a été particulièrement développée au Japon -pour des mesures d'abord attosecondes puis femtosecondes-, bien que la première mesure à *l'échelle attoseconde* avec cette technique ait été réalisée en Allemagne [66]. Son principale avantage est de fournir, pour les plus sceptiques, une preuve très directe de l'existence des impulsions attosecondes.

Il est cependant difficile de lui trouver d'autres atouts. Du fait des intensités élevées qu'elle nécessite, elle a été essentiellement utilisée pour des trains d'impulsions, et dans de rares cas pour des impulsions uniques, générées dans des conditions très particulières [67]. De plus, il est aujourd'hui bien connu qu'une trace d'auto-corrélation, même interférométrique comme celle obtenue récemment dans le groupe de Katsumi Midorikawa [68], ne permet pas une reconstruction complète du champ électrique [28]. Pire, pour les impulsions non-triviales telles que celles considérées ici, elle ne fournit qu'une estimation grossière de la durée. Elle nécessite en outre d'échantillonner le signal avec de très petits pas en temps, d'une fraction de la durée de l'impulsion attoseconde, alors que des techniques comme FROG CRAB nécessitent seulement des pas en délai d'une fraction du cycle optique du laser.

Cependant, des extensions intéressantes de cette méthode sont possibles. Ces mesures ont jusqu'à présent été réalisées en utilisant le signal d'ions produit par l'ionisation à deux photons. En utilisant au contraire le signal de photoélectrons, et en mesurant en outre le spectre en énergie de ces photoélectrons, on peut réaliser l'équivalent d'une mesure SHG FROG sur le champ attoseconde. Etant basée sur un effet non-linéaire donnant de très faibles signaux, cette mesure est cependant très difficile à mettre en oeuvre expérimentalement. Ainsi, malgré des tentatives prometteuses dans d'autres groupes [69], elle n'a pu être démontrée que par quelques équipes au Japon [70, 71], et cela sur des harmoniques relativement basses, donnant un flux suffisant fort.

Chapitre 2

Les miroirs plasmas : de l'ionisation à la génération d'harmoniques

La génération d'harmoniques dans les plasmas : un retour aux origines

La génération d'harmoniques dans les gaz permet aujourd'hui d'obtenir des sources d'impulsions ultrabrèves XUV de très grande qualité, et aux propriétés uniques. En particulier, comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, il s'agit du seul processus permettant actuellement de générer des impulsions attosecondes. En outre, la physique de ce processus est aujourd'hui extrêmement bien comprise [20].

Cependant, historiquement, c'est lors de l'interaction avec un plasma généré sur cible solide, et non avec des atomes, que des harmoniques d'ordre très élevé d'un laser furent obtenues pour la première fois [72]. En particulier, en 1981, Carman *et al.* focalisent des impulsions nanosecondes générées par un laser CO_2 (longueur d'onde $10.6 \mu m$), sur une cible initialement solide, à des intensités allant jusqu'à $10^{15} W/cm^2$, et observent la génération d'harmoniques jusqu'à l'ordre 27 [73], puis 49 dans une seconde expérience [74]. Ces expériences très spectaculaires pour l'époque suscitèrent un vif intérêt, du fait des ordres élevés des harmoniques obtenues. Elles ne furent cependant suivies d'aucune étude expérimentale approfondie, et ne donnèrent lieu qu'à seulement quelques études théoriques [75, 76]. Il fallut ensuite attendre presque 15 ans pour que de nouvelles expériences de génération d'harmoniques sur les plasmas soient réalisées [77, 78, 79], cette fois-ci avec des impulsions lasers beaucoup plus courtes.

Entre-temps, une très forte activité de recherche s'était en revanche développée sur la génération d'harmoniques dans les gaz, qui correspondait à un régime d'interaction plus facile à atteindre avec les lasers alors disponibles, et qui a ainsi pris le pas sur la génération dans les plasmas. Ce n'est que récemment que la génération d'harmoniques dans les plasmas a à son tour fait l'objet d'études expérimentales et théoriques détaillées, qui ont permis une meilleure compréhension des mécanismes mis en jeu. Ce chapitre décrit ma contribution -et plus généralement celle du groupe Physique à Haute Intensité du CEA et de ses collaborateurs au LULI- à ces avancées récentes.

Quelles difficultés ?

Plusieurs facteurs expliquent le fait que la génération d'harmoniques dans les plasmas n'ait pas fait l'objet de plus d'activité -notamment au niveau expérimental- pendant plus de 15 ans, malgré les premiers résultats prometteurs de Carman *et al.* Tout d'abord, les seuls lasers suffisamment intenses alors disponibles, tels que les lasers CO_2 , étaient de grosses installations, d'un accès par conséquent limité, avec de très bas taux de répétition rendant toute étude systématique très difficile.

De plus, ces lasers délivrent des impulsions longues -typiquement nanosecondes : l'expansion hydronamique du plasma pendant l'interaction joue donc un rôle essentiel, et rend cette interaction extrêmement complexe. Pour cette raison, les conditions d'interaction sont mal connues, ce qui complique considérablement l'interprétation des résultats expérimentaux. Ainsi, à l'époque de ces expériences, le mécanisme proposé pour interpréter ces résultats prédisait une extension du spectre harmonique jusqu'à la fréquence plasma maximale ω_p^{max} de la cible -fréquence qui dépend de la densité maximale dans cette cible. Or, en régime nanoseconde, la profil de densité dans le plasma est le résultat d'une compétition entre l'expansion thermique du plasma, et la pression de radiation exercée par l'impulsion laser sur la cible. Ce profil n'étant pas connu a priori, la densité maximale du plasma est inconnue, et il était donc impossible de confirmer ou d'infirmer avec certitude la prédiction théorique d'une coupure à ω_p^{max} [74].

Parallèlement à ces difficultés expérimentales, les outils numériques -codes de simulation et machines de calcul- n'avaient pas encore atteint le niveau nécessaire pour simuler correctement une telle interaction [80]. Les études théoriques étaient donc limitées à des approches analytiques, nécessairement très simplifiées vu la complexité de l'interaction [75], ou à des simulations numériques trop rudimentaires pour être concluantes [74].

Enfin, une motivation forte pour l'étude de la génération d'harmoniques est l'obtention de nouvelles sources de lumière cohérente, à des longueurs d'onde inaccessibles par d'autres moyens -par exemple dans le domaine XUV ou X. Or, de ce point de vue, la génération d'harmoniques dans les plasmas avec des lasers CO_2 ne présentait aucun potentiel. D'une part, du fait de l'expansion du plasma, l'émission harmonique n'était pas collimatée, et était probablement incohérente spatialement. D'autre part, la longueur d'onde de départ se situant dans l'infrarouge lointain, la génération d'harmoniques élevées, même avec des ordres de quelques dizaines, permettait seulement d'obtenir de la lumière dans le visible ou le proche UV. Cette gamme étant encore accessible aux lasers conventionnels, une telle source ne présentait que peu d'intérêt.

Deux facteurs ont conduit depuis le milieu des années 90 à un regain d'intérêt pour la génération d'harmoniques dans les plasmas, et à des progrès significatifs dans la compréhension des mécanismes associés. Il s'agit d'une part des progrès des lasers ultrabrefs, qui peuvent aujourd'hui atteindre des intensités telles que l'interaction laser-matière se déroule dans le régime dit relativiste [81]. Avec ces impulsions ultrabrèves, les conditions d'interaction sont mieux connues, et la physique de l'interaction se trouve grandement simplifiée, ce qui permet de mieux en comprendre les mécanismes. De plus, il devient possible d'exploiter cette interaction pour obtenir de la lumière cohérente à très courte longueur d'onde, qui plus est avec des durées potentiellement attosecondes [25].

Par ailleurs, les évolutions des moyens de calcul et des codes de simulations font qu'il est aujourd'hui possible de simuler avec précision l'interaction, et donc d'analyser en détail la physique sous-jacente. Les codes de type "Particle-In-Cell" (PIC) constituent en particulier des outils particulièrement adaptés à l'étude de ce phénomène.

Un dernier obstacle...

Un dernier obstacle a cependant considérablement freiné les recherches sur la génération d'harmoniques sur les plasmas générés sur cible solide depuis le milieu des années 90 : il s'agit du problème du contraste temporel des lasers ultrabrefs. Du fait de la technologie utilisée dans ces lasers, les impulsions ultrabrèves sont toujours entourées d'un "piédestal" de lumière parasite, beaucoup plus faible, mais beaucoup plus long que cette impulsion principale (Fig. 2.1). Ainsi, en sortie d'un laser ultrabref amplifié, le rapport d'intensité entre le piédestal et l'impulsion principal, appelé contraste temporel, est typiquement de 10^6 à 10^8 à l'échelle de quelques dizaines de *ps*, et ce piédestal peut durer jusqu'à quelques nanosecondes.

Lorsque l'impulsion principale est focalisée sur une cible solide à des intensités extrêmement élevées, ce piédestal devient suffisamment intense pour ioniser et détruire cette cible bien avant l'arrivée de l'impulsion principale. Cette impulsion interagit alors avec un plasma détendu, et l'on retrouve finalement une situation d'une complexité comparable à celle rencontrée avec les impulsions longues.

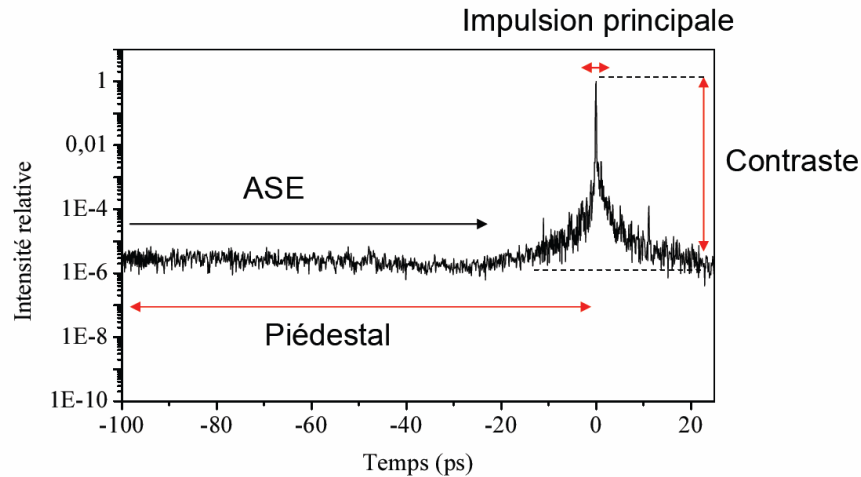


FIG. 2.1 – Exemple de mesure du profil temporel d'une impulsion femtoseconde amplifiée par un autocorrélateur du 3^{ième} ordre (Séquoia). L'intensité est reportée en échelle logarithmique. Le contraste est défini comme le rapport entre le niveau du piédestal et celui de l'impulsion principale. Le piédestal est composé aux temps longs de l'ASE, et autour de l'impulsion d'une zone de contraste dit "cohérent".

Ce piédestal n'est pas seulement un problème pour la génération d'harmoniques sur cible solide, mais plus généralement pour toute interaction à ultra-haute intensité laser avec des impulsions courtes. Des efforts très importants ont donc été mis en oeuvre dans

de nombreux laboratoires pour améliorer le contraste temporel des lasers ultrabrefs. A mon retour de post-doctorat au Canada en 2002, j'ai rejoint l'équipe de Philippe Martin au CEA, qui débutait alors, en collaboration avec Jean-Paul Geindre et Patrick Audebert du LULI, une étude sur l'utilisation de "miroirs plasmas" pour résoudre ce problème. J'ai alors participé à cette étude, qui constituait un prolongement naturel et intéressant de mon travail de thèse sur la claquage optique des solides diélectriques en impulsions ultrabrèves. Cette étude, résumée dans la première section de ce chapitre, a été le point de départ de toutes nos activités expérimentales ultérieures sur la génération d'harmoniques.

2.1 Filtrage temporel par miroir plasma

2.1.1 Principe

L'utilisation de miroirs plasmas comme interrupteurs optiques ultrarapides pour améliorer le contraste temporel des laser ultrabrefs a été proposée par Kapteyn *et al* dès 1991 [82], qui réalisèrent également une première expérience de démonstration de principe. L'idée de départ est extrêmement simple et élégante (Fig 2.2).

L'impulsion ultrabrève et son piedestal sont focalisés sur une interface vide-diélectrique, présentant une très faible réflectivité R_i -par exemple, réflexion en polarisation p à l'angle de Brewster, ou surface avec un traitement multicouche anti-reflet. Le point clef réside dans le choix de la fluence d'interaction, que l'on ajuste par le biais de la focalisation. La focalisation doit être suffisamment faible pour que le piedestal ne puisse pas ioniser la cible. Elle doit cependant être suffisamment forte pour que l'impulsion principale, beaucoup plus intense que le piedestal, ionise très fortement la cible via différents effets non-linéaires, au premier rang desquels se trouve l'absorption multiphotonique par les électrons de valence de la cible. Si cette ionisation se fait de façon très rapide, en quelques cycles optiques seulement, on peut passer en quelques femtosecondes d'une interface vide-diélectrique très peu réfléchissante, à une interface vide-plasma surcritique, avec un coefficient de réflectivité R_f beaucoup plus élevé.

Pour un choix approprié de la focalisation, cette transition se produit dans le front montant de l'impulsion principale. On améliore alors la contraste temporel d'un facteur R_f/R_i , qui peut comme nous le verrons plus loin atteindre plusieurs ordres de grandeur.

Lorsque nous avons commencé l'étude de ce processus en 2002, plusieurs expériences validant le principe de base de ce filtrage temporel avaient été effectuées et décrites dans la littérature [83, 84], mais aucune étude vraiment détaillée n'avait encore été réalisée. Les questions essentielles à traiter sont les suivantes :

- (i) Quelle est la réflectivité maximale du miroir plasma une fois déclenché ? Quels sont les gains de contraste que l'on peut obtenir ?
- (ii) Le déclenchement du miroir plasma est-il bien ultrarapide ? Jusqu'à quelle échelle de temps peut-on supprimer le piedestal ?
- (ii) Quels sont les effets d'un miroir plasma sur les propriétés spatiales et spectrales de l'impulsion ? Notamment, quand l'expansion du plasma commence-t-elle à induire

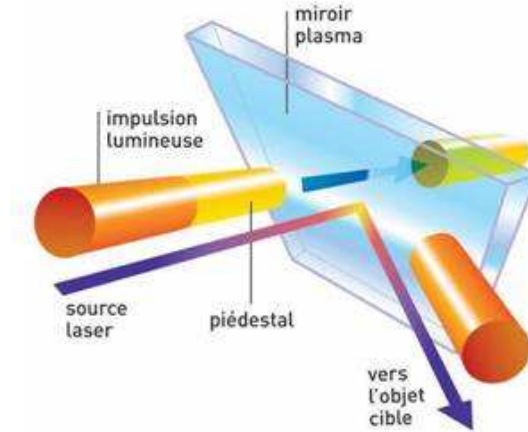


FIG. 2.2 – Principe du filtrage temporel par miroir plasma.

une distorsion du front d'onde de l'impulsion réfléchie ?

L'étude que nous avons réalisée en 2002, dans le cadre de la thèse de Gilles Doumy [85], a permis d'apporter des réponses claires à la plupart de ces questions, de façon beaucoup plus précise que les travaux antérieurs [86]. Elle a fourni la première base solide pour la conception et l'implémentation sur les laser ultraintenses de miroirs plasmas pour l'amélioration du contraste temporel. Voyons à présent les grandes lignes des résultats de cette étude, dont les résultats sont détaillés dans la référence [86] (annexe B5).

2.1.2 Etudes expérimentale et numérique détaillées

L'étude que nous avons réalisée a reposé à la fois sur des simulations numériques, réalisées en particulier au moyen d'un code hydrodynamique développé par Jean-Paul Geindre, et sur des mesures expérimentales relativement complètes, effectuées sur le laser 1 TW-40 fs LUCA du CEA.

Réflectivité d'un miroir plasma

Nous avons tout d'abord effectué des mesures calibrées de la réflectivité d'un miroir plasma, en fonction de la fluence incidente (Fig. 2.3). Cette mesure fournit deux informations essentielles :

- (i) *La fluence de déclenchement du miroir plasma.* Elle est typiquement de l'ordre de 10 J/cm^2 , et ne dépend que faiblement de la durée d'impulsion laser. Cette dernière caractéristique montre que c'est l'énergie cumulée, et non l'intensité laser, qui est le paramètre pertinent pour l'ionisation de la cible, et fournit ainsi des informations essentielles sur les processus d'excitation électronique mis en jeu pour créer le plasma : elle montre en effet que l'avalanche électronique due à l'ionisation collisionnelle par les électrons chauds joue un rôle crucial dans la formation du plasma.

- (ii) *La réflectivité maximale du miroir plasma.* Cette réflectivité maximale est atteinte une fois un plasma très surdense formé à la surface de la cible. Nous avons mesuré une valeur maximale de l'ordre de 70% en polarisation s et pour des fluences modérées de l'ordre de $100 J/cm^2$.

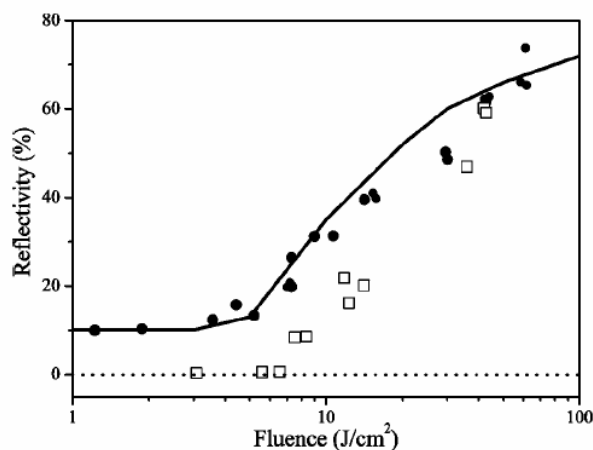


FIG. 2.3 – Réflectivité d'un miroir plasma en fonction de la fluence incidente, pour deux types de cible : silice massive (ronds pleins) et cible diélectrique (carrés creux) munie d'un traitement anti-reflet à la longueur d'onde laser. La quantité représentée ici est la réflectivité mesurée au maximum de la tâche focale du faisceau laser.

Avec un traitement anti-reflet de bonne qualité, la réflectivité initiale R_i de la cible est typiquement de moins de 0.3 % sur toute la largeur du spectre. Avec $R_f = 70$ %, on peut donc atteindre des gains de contraste de typiquement plus de 2 ordres de grandeur par réflexion sur un seul miroir plasma.

Le prix à payer pour cela est une absorption de 30% de l'énergie laser. En polarisation s , il s'agit exclusivement d'absorption collisionnelle dans le plasma, qui est élevée du fait des forts taux de collisions ($\approx 1 fs^{-1}$) dans les plasma denses ($n \approx 10^{23} cm^{-3}$) et relativement froids ($T_e \approx 100 eV$) créés à la surface de la cible. D'après les modèles, cette absorption peut diminuer à plus haute fluence ($> 200 J/cm^2$ pour des impulsions de moins de 1 ps), mais reste en revanche systématiquement plus forte en polarisation p du fait des processus d'absorption additionnels entrant en jeu, tels que l'absorption résonante.

Comportement temporel d'un miroir plasma

Nous avons également vérifié que le miroir plasma est bien déclenché par l'impulsion principale, en un temps très court. Pour cela, nous avons envoyé une impulsion avec une importante dérive de fréquence (impulsion de limite de Fourier 40 fs, étirée à 1 ps environ). Pour une telle impulsion, on a une correspondance linéaire entre la fréquence ω et le temps t (Fig.2.4(a)) : en mesurant le spectre de l'impulsion réfléchie, et en

le comparant au spectre avant réflexion, on mesure donc l'évolution temporelle de la réflectivité de miroir plasma (Fig.2.4 (b)) [87, 88].

On peut voir sur la figure 2.4 (b) que le miroir est bien déclenché pendant l'impulsion laser, et plus précisément pendant son front de montée pour les fluences les plus élevées. Cette mesure démontre donc bien que le piedestal de l'impulsion est partiellement éliminé (dans le rapport R_i/R_f) lors du passage sur le miroir plasma, et cela jusqu'au tout début de l'impulsion laser. La résolution temporelle de cette mesure est cependant au mieux de l'ordre de la limite de Fourier de l'impulsion : elle ne peut donc pas être utilisée pour mesurer précisément le temps de déclenche du miroir. De plus, la mesure de ce temps serait véritablement intéressante pour des impulsions plus courtes, de quelques dizaines de fs , et non pour des impulsions picosecondes. Une telle mesure est possible en principe par d'autres méthodes (par exemple SPIDER ou FROG, cf. chapitre précédent), mais est extrêmement difficile et n'a de ce fait encore jamais été réalisée à ce jour.

Effet d'un miroir plasma sur les propriétés spatiales du faisceau laser

Enfin, nous avons étudié l'effet du miroir plasma sur les propriétés spatiales du faisceau. Pour cela, nous avons mesuré les profils d'intensité du laser dans le plan de la surface du miroir plasma, et plusieurs dizaines de centimètres après le miroir plasma. La figure 2.5 compare ces profils à basse fluence, où la cible se comporte comme un miroir standard (de faible réflectivité), et à haute fluence où l'ionisation entre en jeu. Dans le plan de la cible, le miroir plasma a simplement un effet de filtrage en intensité : les parties de la tâche focale les moins intenses, telle que les anneaux d'Airy (dus au profil supergaussien du laser avant focalisation) sont éliminées car trop faibles pour déclencher l'ionisation. Lorsque le laser diverge depuis la cible, cet effet de filtrage dans le plan focal se traduit naturellement par une suppression des hautes fréquences spatiales dans le faisceau laser : ainsi, de supergaussien, le faisceau laser est devenu quasi-gaussien, les bords raides ayant été lissés. On remarque surtout que le profil en intensité du laser n'est absolument pas dégradé : on peut en conclure que l'expansion du plasma n'a pas affecté de façon significative les fronts d'onde au niveau du foyer.

Pour déterminer de façon plus quantitative l'effet du plasma sur les fronts d'onde du laser, nous avons mesuré la phase spatiale du faisceau. Pour cela, nous avons réalisé une mesure d'interférométrie spectrale résolue spatialement, avec un faisceau laser de référence. En utilisant à nouveau des impulsions à dérive de fréquence, on peut mesurer, en un seul tir laser, l'évolution temporelle de cette phase sur une durée de quelques ps (Fig. 2.4(c)). Cette mesure donne directement accès à l'évolution de la position de la surface du plasma, liée à l'expansion. Nous avons ainsi vérifié que pour des durées d'impulsion laser inférieures à 1 ps, et des fluences de quelques centaines de J/cm^2 , l'expansion du plasma n'affecte que très peu les fronts d'onde du faisceau réfléchi.

Bilan : diagrammes fonctionnels d'un miroir plasma

Nous avons ensuite utilisé toutes ces mesures pour valider les codes de simulations à notre disposition, et notamment le code hydrodynamique FILM, modifié par Jean-Paul

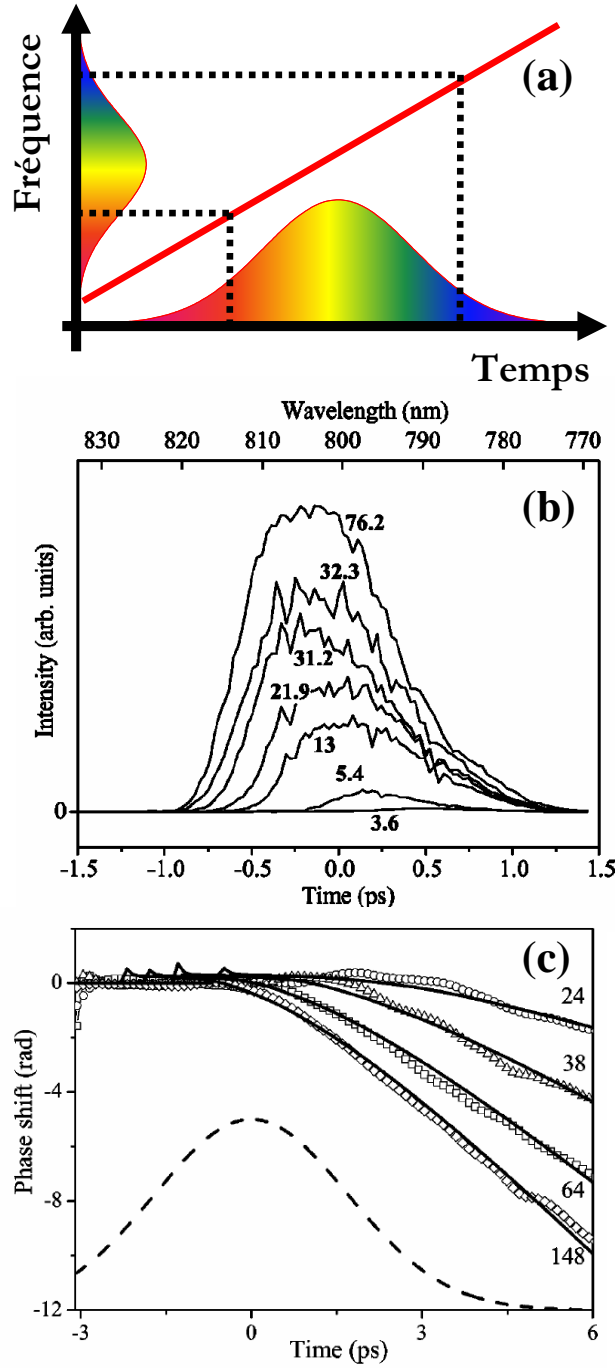


FIG. 2.4 – Utilisation d'impulsions à dérive de fréquence pour la caractérisation d'un miroir plasma. La figure (a) illustre la correspondance existant entre fréquence instantanée et temps pour une impulsion suffisamment étirée. La figure (b) présente les spectres mesurés après réflexion d'une impulsion à dérive de fréquence (durée 1 ps, limite de Fourier 40 fs) sur un miroir plasma, à différentes fluences incidentes. Dans la figure (c), la phase spectrale de cette impulsion a été mesurée par interférométrie spectrale avec une impulsion de référence. Dans ces deux dernières figures, le spectre et la phase, mesurés en fonction de la fréquence ω sont tracés en fonction du temps t , en utilisant la correspondance $\omega - t$ de la figure (a).

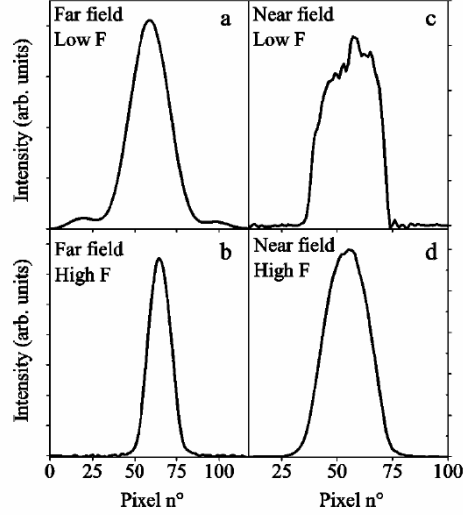


FIG. 2.5 – Profil spatial d'intensité laser (durée d'impulsion 60 fs), à la surface de la cible (a-b) et 60 cm après cette cible (c-d). Les graphes du haut correspondent à des tirs à basse fluence, où le miroir plasma n'est pas déclenché, et les graphes du bas à des tirs à haute fluence, où le miroir plasma est créé.

Geindre pour prendre en compte l'interaction avec la cible solide initiale et la transition vers l'état plasma. Ces mesures nous ont également permis de déterminer certains paramètres ajustables de ces codes, comme la section efficace de l'absorption multiphotonique, qui fournit les premiers électrons constituant le germe de l'avalanche électronique, responsable de l'essentiel de l'ionisation. On peut alors utiliser ces codes pour calculer la réflectivité du miroir plasma et la distorsion de phase induite par celui-ci, en fonction de la durée d'impulsion laser et de la fluence. On obtient alors les "diagrammes fonctionnels" d'un miroir plasma, présentés sur la figure 2.6. Le point essentiel est qu'il existe une large gamme de paramètre où la réflectivité du miroir est constante : ceci est dû au fait que le plasma est fortement surdense dans cette gamme, et la réflectivité dépend alors peu de la densité exacte. En outre, le taux de collision electron-ion est à peu près constant dans toute cette plage. Dans cette plage, il existe également une large zone où la distorsion de phase induite est négligeable. L'intersection de ces deux zones correspond à l'aire bleutée de la figure 2.6, qui donne la zone de fonctionnement idéal d'un miroir plasma.

Le miroir plasma apparaît donc comme un élément optique extrêmement robuste, insensible aux fluctuations de caractéristiques laser : il s'agit là d'un point essentiel pour son utilisation pratique sur des chaînes laser. Il convient à des impulsions lasers de moins de quelques ps. La principale contrainte est de bien choisir la fluence de fonctionnement. Celle-ci doit être suffisante pour déclencher le miroir, c'est-à-dire concrètement supérieure à $10 J/cm^2$ quelle que soit la durée d'impulsion. Elle doit cependant être suffisamment basse pour que ce ne soit pas le piedestal qui déclenche l'ionisation de façon

prématurée.

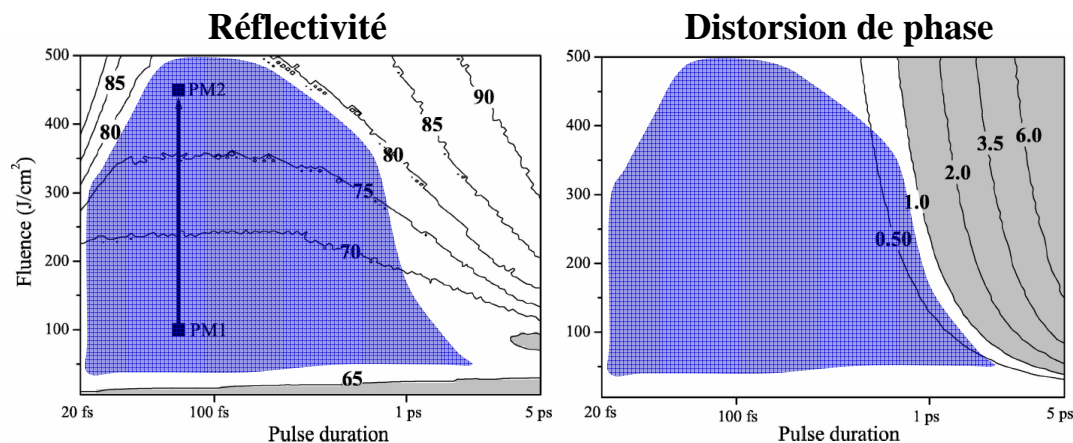


FIG. 2.6 – Diagrammes fonctionnels d'un miroir plasma. Le graphe de gauche présente la réflectivité du miroir, et celui de droite la distorsion de phase induite par l'expansion du miroir plasma (écart entre la phase induite au centre de la tâche et la phase en bord de tâche), en fonction de la durée et de la fluence. Les parties grisées correspondent aux zones où le miroir plasma ne doit pas être utilisé. La zone bleutée correspond au régime de fonctionnement satisfaisant et robuste du miroir plasma.

2.1.3 Implémentation de miroirs plasmas sur un laser multi-Terawatt

Suite à cette étude détaillée, la décision a été prise d'implémenter un miroir plasma sur le laser femtoseconde 10 TW du CEA, UHI10, dont le potentiel n'avait jusqu'à lors pas pu être totalement exploité du fait des problèmes de contraste (la courbe de contraste initial de ce laser est celle de la figure 2.1). Restait à trouver une expérience qui permette de bien mettre en évidence l'importance du contraste temporel : Patrick Audebert et Jean-Paul Geindre proposèrent d'utiliser la génération d'harmoniques sur cible solide, processus connu pour nécessiter des contrastes élevés. Ceci constitua le point de départ des études beaucoup plus approfondies sur ce phénomène, réalisées entre 2005 et 2009.

Bien qu'étant intervenu à certains stades, je n'ai joué qu'un rôle secondaire dans les développements des différentes générations de miroir plasma installées sur UHI 10, et dans les premières expériences de génération d'harmoniques. Je présente tout de même brièvement ici l'implémentation de miroirs plasma sur UHI, car ces développements ont joué un rôle crucial par la suite, et illustrent bien le travail d'équipe qui a ultérieurement permis d'obtenir des résultats totalement nouveaux.

Miroir plasma simple sur UHI10

Les premières expériences ont consisté à installer un seul miroir plasma entre l'optique de focalisation et la cible destinée à générer les harmoniques, placée quant à elle au foyer du laser (Fig. 2.7) [89]. Ces expériences ont été réalisées dans le cadre de la thèse de

Gilles Doumy [85]. Ce miroir plasma, consistant en une cible diélectrique traitée anti-reflet, est positionné à quelques millimètres du foyer, et cette distance est ajustée de façon à obtenir la fluence nécessaire à son bon fonctionnement. On obtient ainsi un montage très compact, mais dont l'inconvénient majeur est de ne permettre qu'une dizaine de tirs lasers avant remplacement des cibles.

Cette configuration a néanmoins permis de réaliser l'une des premières mesures de profil temporel à grande dynamique avec miroir plasma, mettant ainsi directement en évidence une amélioration du contraste de plus de deux ordres de grandeur jusqu'au tout début de l'impulsion principale (Fig. 2.8) [89]. Soulignons que ces mesures ne permettent toujours pas de déterminer précisément le temps d'ionisation du miroir plasma : en effet, du fait de l'épaisseur importante des cristaux non-linéaires utilisés pour cette mesure, la résolution temporelle de l'instrument est seulement de quelques centaines de fs.

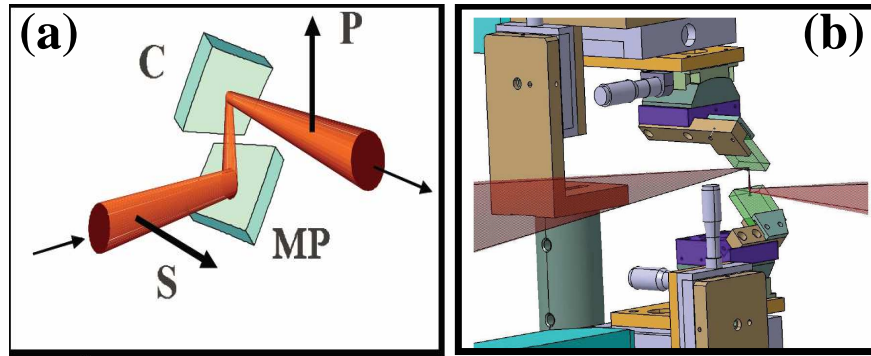


FIG. 2.7 – Installation d'un miroir plasma simple sur UHI10. La figure de gauche montre le schéma de principe, qui permet de se réfléchir en polarisation s sur le premier miroir plasma (MP) servant à améliorer le contraste, et en polarisation p sur le deuxième miroir plasma (noté C pour cible) afin de générer efficacement des harmoniques. La figure de droite montre la mise en oeuvre de ce montage.

Ce montage a ensuite été utilisé pour une toute première expérience de génération d'harmoniques sur cible solide diélectrique avec UHI10. Nous avons dans ces conditions pu observer des harmoniques jusqu'à l'ordre 20 dans le faisceau réfléchi par la deuxième cible (Fig. 2.9(a)). Ce signal disparaît totalement lorsqu'aucun miroir plasma n'est utilisé (Fig. 2.9(b)). Ce signal harmonique est de plus collimaté, formant un faisceau avec une divergence inférieure à celle du laser initial : ceci montre que le plasma généré sur la deuxième cible se comporte lui aussi comme un miroir, du fait de son expansion très limitée pendant l'interaction. Dans la suite de ce manuscrit, on parlera donc aussi de miroir plasma pour désigner une cible solide permettant de générer un faisceau harmonique collimaté.

Passage à un double miroir plasma

Lors des expériences avec un simple miroir plasma, nous avons observé que le contraste temporel n'était pas encore suffisant pour pouvoir interagir avec une cible solide aux intensités les plus élevées fournies par UHI10. En pratique, le simple miroir plasma nous

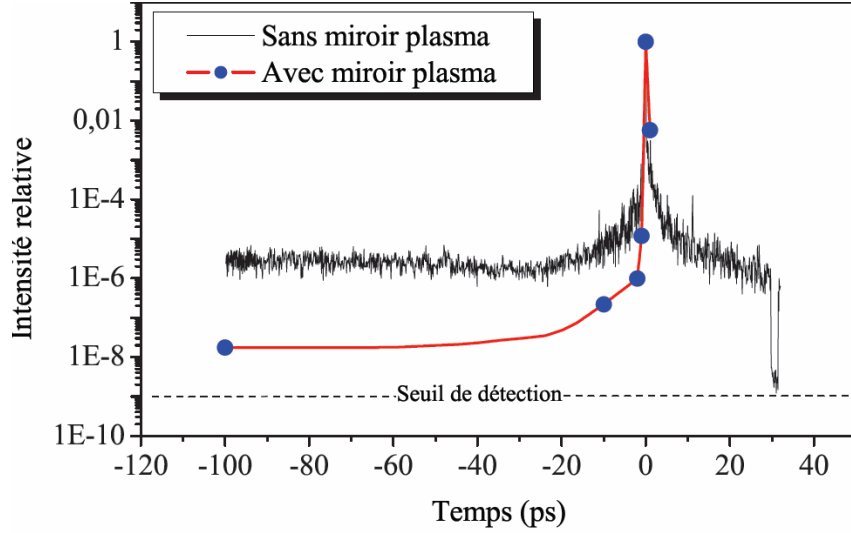


FIG. 2.8 – Profil temporel de UH10, mesuré avec un corrélateur croisé du 3^{ième} ordre à grande dynamique, en sortie de laser et après réflexion sur un seul miroir plasma.

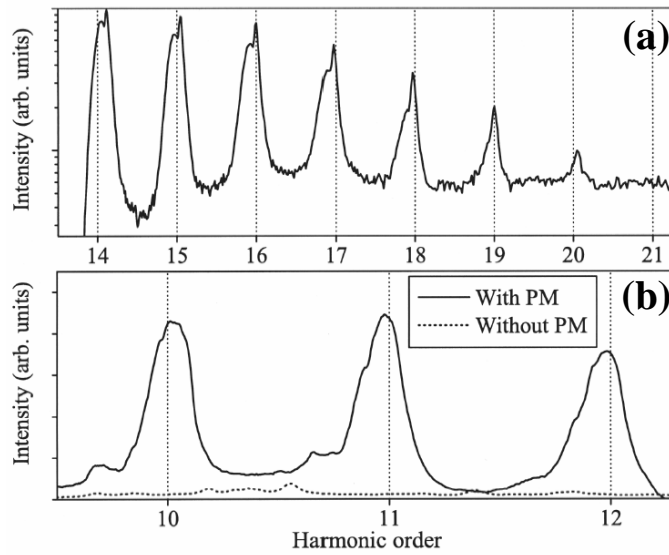


FIG. 2.9 – Spectre de la lumière réfléchié par le deuxième miroir plasma (ou cible). Le spectre (a) montre la coupure observée dans le spectre autour de l'harmonique 20, et la figure (b) compare les spectre mesurés sans amélioration préalable du contraste, et avec l'utilisation d'un simple miroir plasma comme filtre temporel. Des harmoniques de la fréquence incidente sont observées seulement après amélioration du contraste.

a permis de générer des harmoniques sur cible solide avec une parabole de focalisation de focale 500 mm, mais ce signal disparaissait en passant à une longueur focale de 200 mm. Afin de remédier à ce problème, nous avons donc décidé d'installer de façon permanente un double miroir plasma lors de l'aménagement d'une nouvelle salle d'expérience radioprotégée pour UHI10 [90]. Ce développement a notamment fait partie du travail de thèse d'Anna Lévy [91].

Ce système est présenté sur la figure 2.10. Il est placé dans une enceinte située entre le compresseur et la chambre d'expérience. Le faisceau est focalisé par une parabole hors-axe de longue focale (1.20 m), puis se réfléchit sur deux miroirs plasmas (cibles diélectriques traitées anti-reflet à 800 nm) placés au voisinage du foyer, avant d'être recollimaté par une deuxième parabole identique à la première puis envoyé dans l'enceinte expérimentale. La grande longueur focale des paraboles rend possible l'utilisation de cibles de grande dimension (40 x 150 mm), ce qui permet de réaliser un grand nombre de tirs consécutifs. Ainsi, sachant que la taille du faisceau sur ces miroirs plasma est de l'ordre de quelques millimètres carrés, on peut typiquement réaliser 2000 tirs avant d'avoir à remplacer ces cibles.

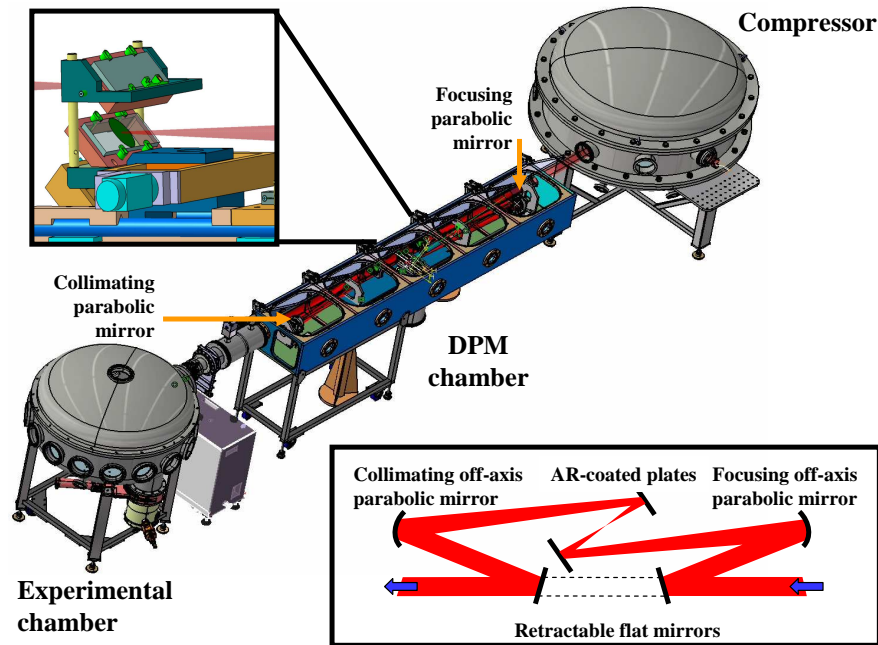


FIG. 2.10 – Vue d'ensemble du système de double miroir plasma installé sur UHI10. Le zoom montre les deux lames anti-reflet servant de miroirs plasmas. L'encadré montre le schéma optique du montage.

Grâce à ce système, nous avons pu mesurer l'effet d'un double miroir plasma sur le contraste temporel du laser, avec un plus grand nombre de points de mesure que dans le cas du simple miroir plasma (Fig. 2.11). On observe comme attendu une amélioration du contraste de plus de 4 ordres de grandeur [90]. Dans ces conditions, il nous est devenu possible de générer des harmoniques aux intensités les plus élevées atteintes par

UHI10 (avec une parabole de focale 200 mm), non seulement sur des cibles diélectriques comme dans les premières expériences, mais aussi sur des cibles métalliques, beaucoup plus sensibles au pedestal [90]. Comme attendu, la transmission totale en énergie de ce système optique est d'environ 50 % (30% de perte par miroir plasma), et nous avons vérifié qu'il ne dégradait pas les propriétés spatiales du faisceau, en particulier la tâche focale.

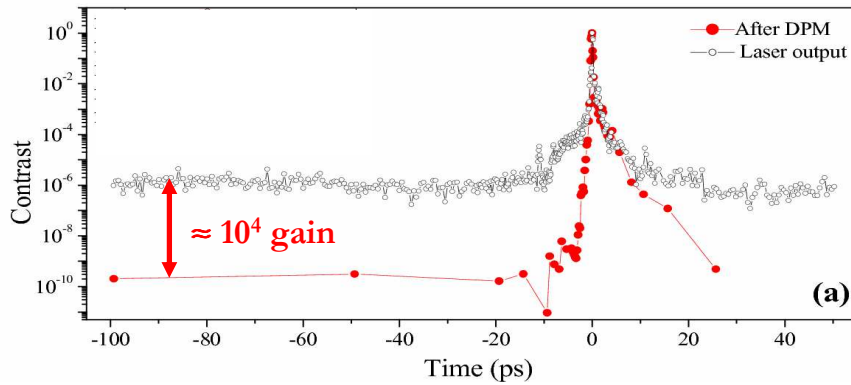


FIG. 2.11 – Profil temporel de UHI10, mesuré avec un corrélateur croisé du 3^{ième} ordre à grande dynamique, en sortie de laser et après réflexion sur un double miroir plasma.

Nos travaux sur les miroirs plasmas et leur utilisation pour l'amélioration du contraste, ainsi que ceux réalisés en parallèle au Rutherford Appleton Laboratory en Grande-Bretagne par le groupe de Matthew Zepf (Queen's University, Belfast) [92], ont clairement montré l'intérêt de ce type de dispositif. Ils ont ainsi influencé plusieurs autres laboratoires travaillant sur l'interaction laser-plasma à très haute intensité, qui ont récemment installé, ou sont en train d'installer des miroirs plasmas sur leur laser femto-seconde. Ces dispositifs d'amélioration de contraste, issus d'une démarche initialement fondamentale, ont ainsi ouvert la porte à une étude détaillée de la génération d'harmoniques sur miroir plasma. Bien que ne traitant pas de ce sujet dans ce mémoire, il est important de souligner qu'ils ont aussi joué un rôle essentiel dans l'étude de l'accélération d'ions sur cible mince [93], en rendant notamment possible l'interaction contrôlée avec des feuilles d'épaisseurs de quelques nanomètres seulement.

2.2 Mécanismes de génération d'harmoniques sur miroir plasma

La deuxième partie de ce chapitre résume ma contribution à l'étude de la génération d'harmoniques et d'impulsions attosecondes sur miroir plasma. Ces travaux ont essentiellement été réalisés dans le cadre de la thèse de Cédric Thaury [94], et sont actuellement poursuivis avec la thèse de Hervé George (soutenance prévue courant 2010).

Deux mécanismes de génération, identifiables expérimentalement

Lorsque nous avons effectué nos premières expériences de génération d'harmoniques sur miroir plasma, le modèle dominant pour expliquer ce phénomène, en particulier en impulsions ultrabrèves, était alors celui dit du "miroir oscillant relativiste", mis en avant par Lichters *et al* [95] et Von der Linde *et al* [96] dans les années 90. Ce mécanisme, qui domine la génération d'harmoniques au delà de quelques 10^{18} W/cm^2 , fait l'objet de la première section de cette partie.

Comme nous le verrons, ce modèle ne suffisait clairement pas à expliquer nos premières observations expérimentales : grâce aux simulations numériques, nous avons rapidement pu identifier un autre mécanisme [26] (article en annexe B6), que nous avons appelé "émission cohérente de sillage", entrant en jeu dès quelques 10^{15} W/cm^2 et présenté dans la deuxième section.

Nous nous contenterons ici d'une présentation relativement qualitative de ces deux mécanismes. Une analyse plus rigoureuse nécessite d'étudier en détail la distribution de courant électrique transverse induit par le laser dans le plasma, et de calculer le champ électromagnétique rayonné par ce courant à partir de la formule des courants retardés [97]. Cette analyse s'avère très instructive, mais dépasse le cadre de ce mémoire. Je prépare actuellement, en collaboration avec Cédric Thauray, un article détaillé sur ces deux mécanismes, basé pour partie sur cette analyse des courants induits.

Nous verrons enfin les différentes observations expérimentales qui ont permis de mettre en évidence ces deux mécanismes, et de montrer comme clairement différencier les harmoniques qui leur sont associées.

Outils expérimentaux et numériques utilisés

La quasi-totalité des expériences réalisées sur ce sujet l'ont été avec le laser 10 TW-60 fs UHI 10 du CEA, muni du double miroir plasma présenté dans la partie précédente. Une seule expérience, qui a néanmoins joué un rôle particulièrement important, a été réalisée sur le laser 1 TW-40 fs LUCA du CEA.

Les simulations numériques au moyen de codes PIC ont également joué un rôle essentiel dans toute cette étude. Nous avons utilisé deux codes de ce type : le code EUTERPE, développé par Guy Bonnaud au milieu des années 80 [98], et le code CALDER, développé par Erik Lefebvre à la fin des années 90 [99]. Le premier est un code 1D, utilisé sur de simples PC, qui permet néanmoins de traiter l'incidence oblique d'un laser sur une cible solide. Pour cela, la simulation est réalisée après une transformation de Lorentz du référentiel du laboratoire vers un nouveau référentiel, dans lequel la cible se déplace parallèlement à sa surface, mais où le laser arrive en incidence normale. Le second code, CALDER, est un code parallélisé, qui permet d'effectuer des simulations de une à trois dimensions spatiales, sur des calculateurs massivement parallèles. Nous l'utilisons sur les machines de différents centres de calcul nationaux : CCRT, CINES et IDRIS. Je suis depuis 2005 en charge des demandes de temps de calcul sur ces machines pour l'ensemble du groupe PHI.

2.2.1 Miroir oscillant relativiste

Présentation qualitative

L'idée de base de ce mécanisme est extrêmement simple et élégante [95]. Sous l'effet du champ laser intense, la "surface" du plasma oscille. La fréquence de cette oscillation dépend des conditions d'interaction : la configuration la plus typique est l'incidence oblique en polarisation p , auquel cas la force dominante est celle associée à la composante du champ électrique normale à la surface de la cible. La surface oscille alors à la fréquence du laser. A suffisamment haute intensité laser -typiquement plus de quelques $10^{18} \text{ Wcm}^{-2} \mu\text{m}^2$ -, cette oscillation de la surface met en jeu des vitesses relativistes.

Le laser, en se réfléchissant sur cette surface en mouvement, subit donc périodiquement un effet Doppler. Cet effet Doppler résulte en un décalage vers les hautes fréquences lorsque la surface du plasma se déplace vers l'observateur, c'est-à-dire vers le vide. Ainsi, si le point de réflexion se déplace vers l'observateur à la vitesse $v = \beta c$ (avec $0 < \beta < 1$), deux signaux incidents séparés d'un temps dt interagiront avec la surface à des instants décalés d'un délai dt' , avec $dt' < dt$ du fait de la distance vdt' parcourue par la surface vers la source entre ces deux instants :

$$dt' = dt - \frac{vdt'}{c} \Rightarrow dt' = \frac{dt}{1 + \beta} \quad (2.1)$$

Les signaux réfléchis par la surface arriveront sur le détecteur séparés d'un temps dt'' avec $dt'' < dt'$ puisque la distance à parcourir par le deuxième signal jusqu'à l'observateur est inférieure de vdt' à celle à parcourir par le premier signal :

$$dt'' = dt' - \frac{vdt'}{c} = (1 - \beta)dt' \quad (2.2)$$

Si l'on suppose pour simplifier β constant pendant toute une période de l'onde incidente ¹, cette onde à la fréquence incidente ω sera donc réfléchie avec une fréquence ω'' donnée par

$$\omega''/\omega = (1 + \beta)/(1 - \beta) \quad (2.3)$$

$$= (1 + \beta)^2 \gamma^2 \quad (2.4)$$

où $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ est le facteur de Lorentz. Pour $\beta \rightarrow 1$, on retrouve le résultat bien connu $\omega''/\omega \approx 4\gamma^2$ pour un miroir en mouvement uniforme fortement relativiste. Puisque ce décalage se produit de façon périodique, une distorsion périodique de l'onde réfléchie est induite, et le spectre de cette onde est donc constitué d'harmoniques de la fréquence incidente.

Observation dans les simulations numériques

La figure 2.12 présente les résultats d'une simulations PIC réalisée au moyen du code

¹Ce n'est clairement pas le cas dans la situation qui nous intéresse ici, mais cette hypothèse présente un intérêt didactique.

EUTERPE, où ce mécanisme domine la génération d'harmoniques (cf. conditions physiques dans la légende). La carte de couleur allant du bleu au rouge montre l'évolution temporelle de la densité électronique $n_e(x)$ du plasma, en échelle logarithmique. On observe clairement une dynamique complexe de la surface du plasma, qui semble effectivement osciller, de façon fortement anharmonique, sous l'effet du laser. Le mouvement se répète comme attendu à l'identique après une période laser. On conçoit cependant qu'il est abusif de parler de mouvement de la surface, car la plasma n'oscille pas simplement en bloc, mais est fortement "déformé" sous l'effet du laser : on voit donc d'emblée les limites de l'image du miroir oscillant, didactique mais trop simple. L'ingrédient essentiel de ce modèle, l'effet Doppler, est cependant effectivement pertinent, comme nous allons le voir à présent.

A deux instants dans chaque cycle optique, des jets d'électrons très denses (plusieurs dizaines de fois la densité critique n_c dans le cas présent) sortent du plasma vers le vide à vitesse relativiste ². A ces instants, un effet Doppler vers le bleu est induit sur le champ réfléchi. Cet effet Doppler se traduit par un raidissement temporel très localisé du champ de l'onde réfléchi, qui apparaît très nettement sur la figure 2.13(a). Une fois la fréquence fondamentale éliminée par un filtrage en fréquence où seul un groupe d'harmoniques est sélectionné (Fig. 2.13(b)), on obtient un champ consistant en un train d'impulsions attosecondes, évidemment localisées aux instants correspondants à ces fronts raides dans l'onde réfléchie.

Ce traitement peut-être réalisé en chaque point x de la boîte de simulation de la figure 2.12 : on obtient alors une carte (x, t) d'intensité des impulsions attosecondes associées aux harmoniques, qui montre très clairement où et quand sont émises ces impulsions au sein du plasma. Une telle carte est superposée en magenta sur la carte de densité de la figure 2.12. On observe que les impulsions attosecondes sont effectivement émises par les jets relativistes allant du plasma vers le vide. Soulignons que le deuxième jet de chaque cycle optique donne aussi lieu à l'émission d'une impulsion attoseconde. Celle-ci est néanmoins beaucoup moins intense que la première, et n'apparaît pas sur le graphe du fait du seuil en intensité utilisé pour tracer cette carte. L'étude détaillée de la distribution de courant transverse induite dans le plasma permet de comprendre cette différence entre les émissions de lumière des deux jets.

Complément : le modèle récent des " γ spikes"

Etant donné la complexité de la dynamique du plasma, il est clair que l'extension du spectre harmonique ne peut être calculée par la simple formule en $4\gamma^2$ correspondant au cas d'un miroir en mouvement uniforme, donnée ci-dessus à titre didactique. Récemment, Alexander Puhkov et son équipe ont proposé une théorie analytique de ce processus en régime fortement relativiste [101], qui prédit notamment un coupure du spectre harmonique à une fréquence proportionnelle à γ^3 et non pas γ^2 , où γ est le facteur de Lorentz maximum de la surface. Ceci est en fait une propriété relativement générale de l'émission électromagnétique de particules en mouvement fortement relativiste, bien connue notamment dans le cas des synchrotron [97] : un facteur γ^2 provient de l'effet Doppler décrit ci-dessus, et un facteur γ du confinement temporel de

²L'apparition d'un deuxième jet par cycle optique se fait généralement à suffisamment haute intensité laser. Cette dynamique complexe et à première vue peu intuitive est probablement due à l'action du champ magnétique du laser sur les électrons [100].

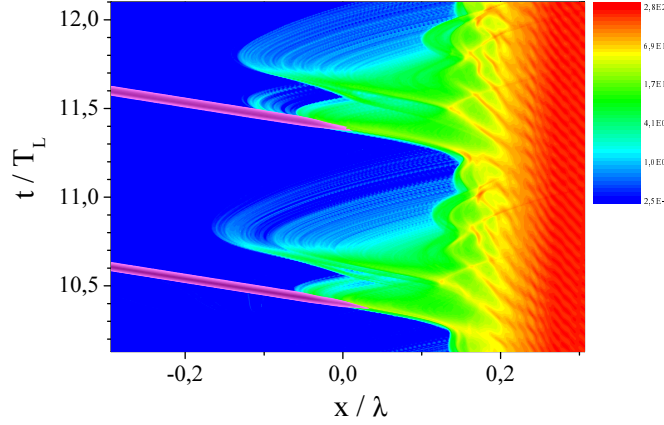


FIG. 2.12 – Simulation PIC (code EUTERPE) de la génération d'harmoniques par effet Doppler. La carte de couleur allant du bleu au rouge (échelle sur le côté du graphe) montre la densité électronique du plasma en échelle logarithmique, et la carte magenta l'intensité du champ magnétique normal au plan d'incidence, filtré spectralement des harmoniques 5 à 95. Pour tracer cette intensité, un seuil fixé à 50% de la valeur maximale a été utilisé. L'intensité du laser incident est de $3.5 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$, la densité maximale initiale du plasma de $225n_c$, les ions sont supposés immobiles pour simplifier, et un gradient de densité exponentiel de longueur caractéristique $\lambda/20$ est initialement imposé.

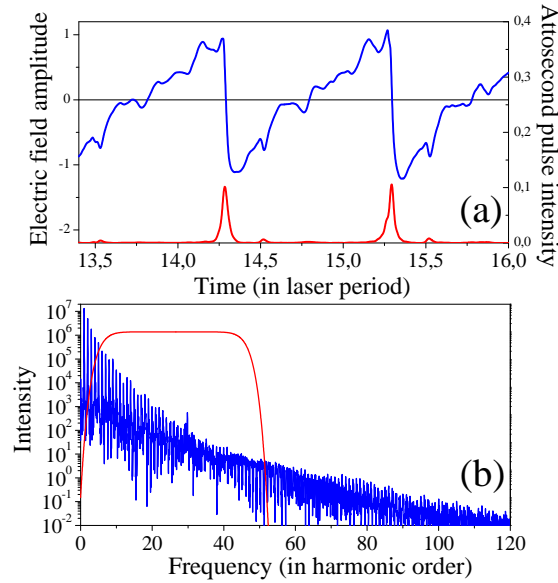


FIG. 2.13 – (a) Champ réfléchi par un miroir plasma dans le cas de génération d'harmoniques par effet Doppler (zoom sur deux cycles optiques). Le champ incident est sinusoïdal. Les conditions physiques sont les mêmes que dans la figure 2.12. La courbe rouge correspond au profil d'intensité du train d'impulsions attosecondes obtenu en filtrant un groupe d'harmoniques dans le spectre. Ce spectre est présenté en (b), ainsi que le filtre utilisé pour obtenir ce train.

l'émission à un temps de l'ordre de $1/\gamma$, du fait du caractère non-uniforme du mouvement des charges. Ce modèle prévoit en outre une décroissance prétendument universelle en $n^{-8/3}$ (n ordre harmonique) du spectre harmonique jusqu'à cette coupure. Ces deux prédictions semblent concorder avec des observations expérimentales récentes sur le laser VULCAN [102, 103].

Cependant, les hypothèses de départ de cette théorie ne correspondent pas à ce que l'on observe dans les calculs numériques, et le raisonnement suivi manque foncièrement de rigueur. La comparaison de ces prédictions avec les spectres issus de simulations numériques n'est pas concluante non plus [94]. La décroissance du spectre ne suit généralement pas la prédiction de cette théorie, sauf dans quelques cas particuliers. En ce qui concerne la loi de coupure, il est difficile de définir un facteur γ maximum pour la surface, sachant que cette surface se déforme sous l'effet du laser et ne reste pas abrupte. Pour contourner ce problème, Baeva *et al* ont fait l'hypothèse que, comme pour un électron libre, $\gamma = \sqrt{1 + a_0^2}$, où a_0 est la potentiel vecteur adimensionné du champ laser incident, et ont obtenu un accord satisfaisant dans quelques cas. Cette hypothèse n'est cependant absolument pas vérifiée dans le cas général le long de la normale à la surface. Une théorie satisfaisante et prédictive de ce phénomène reste donc clairement à mettre au point.

2.2.2 Interlude : bref historique

Interprétation des premières mesures sur UH10

Comme souligné précédemment, lorsque nous avons réalisé nos premières expériences de génération d'harmoniques sur UH10, l'idée communément admise était que le mécanisme dominant la génération d'harmonique en régime d'impulsion courte était l'effet Doppler, décrit par le biais du modèle du miroir oscillant relativiste. C'est donc tout naturellement que nous avons dans un premier temps attribué les harmoniques observées à ce mécanisme [89]. Très vite cependant, les observations expérimentales ont semblé contredire cette interprétation. Nous observions notamment une très faible dépendance de l'ordre harmonique maximum avec l'éclairement laser. Ainsi, même à des intensités lasers de l'ordre de 10^{17} W/cm^2 , où cet effet Doppler était censé devenir inefficace, nous continuions à observer le *même* spectre harmonique, avec une coupure autour de l'ordre 20 sur des cibles de silice. De plus, nous observions le plus souvent des pics harmoniques très larges, avec parfois une structure spectrale très complexe, que nous n'étions pas en mesure d'interpréter.

Une expérience simple mais cruciale sur le laser LUCA

A la suite de ces premières expériences sur UH10, j'ai commencé à m'intéresser très fortement à ce sujet, motivé à la fois par l'idée que la physique sous-jacente n'était peut-être pas totalement comprise, et par la possibilité d'utiliser ce phénomène pour obtenir une nouvelle source d'impulsions attosecondes. Partant du constat que, pour progresser sur ce sujet, il nous faudrait probablement plus de temps de faisceau laser que celui offert par UH10, je décidais alors de tenter une expérience élémentaire de génération d'harmoniques sur miroir plasma avec le laser LUCA du CEA (1 TW-40 fs). En focalisant ce laser très fortement, j'estimais pouvoir atteindre des intensité proches de 10^{18} W/cm^2 . Le contraste de ce laser étant légèrement meilleur que celui de UH10,

j'avais en outre l'espoir que le piedestal ne poserait pas de problème, même sans utiliser de miroir plasma -ce qui présentait l'énorme intérêt de pouvoir effectuer de multiples tirs en variant des paramètres. Le but initial de l'expérience était simplement de vérifier que les performances du laser étaient suffisantes pour générer des harmoniques, avant d'entreprendre des expériences plus ambitieuses.

Après quelques semaines d'expérience, Cédric Thauray et moi avons constaté que nous pouvions seulement focaliser 10% des 50 mJ fourni par LUCA, avant que le piedestal ne commence son effet délétère sur la cible. Nous étions donc limités à des intensités de quelques 10^{16} W/cm^2 . Dans ces conditions, nous étions persuadés de ne pas pouvoir observer d'harmoniques. Après quelques hésitations, nous avons néanmoins décidé d'installer le spectromètre XUV afin de vérifier que cela était bien le cas.

La surprise fut de taille : nous observions des spectres harmoniques comparables à ceux mesurés sur UH10, même à des intensités de seulement quelques 10^{15} W/cm^2 -soit avec 1 mJ d'énergie laser seulement. Nous avons en outre pu facilement changer la durée et la dérive des fréquences des impulsions lasers, ce qui n'était pas possible avec le laser UH10 : nous avons alors observé qu'il était possible de réduire la largeur spectrale des harmoniques en les générant avec une impulsion à dérive de fréquence positive (fréquence allant du rouge vers le bleu). Les effets de largeur spectrale des harmoniques observés sur UH10 étaient donc liés à des effets de phase.

Après quelques jours de mesure, le contraste du laser a changé de façon inexplicable, réduisant ainsi encore l'énergie pouvant être envoyée sur la cible, et nous n'avons jamais plus réussi à observer d'harmoniques sur miroir plasma avec LUCA durant cette campagne. Cette expérience courte et élémentaire nous a néanmoins fourni plusieurs indices essentiels pour comprendre le mécanisme mis en jeu [26].

Interprétation au moyen des simulations PIC

Suite à ces rebondissements expérimentaux, Jean-Paul Geindre a alors effectué des simulations PIC à intensité laser modérée avec le code EUTERPE. Il fut pour cela influencé par des travaux récents du MPQ à Garching, où Teubner *et al* avaient montré que des harmoniques pouvaient être générées à l'arrière de feuille minces, par la biais d'oscillations plasmas excitées dans la partie dense de la cible par des électrons énergétiques [104, 105]. Ces auteurs ne décrivaient cependant pas le détail du mécanisme d'émission. Grâce aux simulations de Jean-Paul Geindre et aux discussions physiques qu'elles ont alimentées, nous avons pu identifier relativement rapidement un nouveau mécanisme d'émission, que nous avons appelé l'émission cohérente de sillage ("Coherent Wake Emission" en anglais, ou CWE). Ce mécanisme, que je décris dans la suite de cette section, est absolument essentiel, car nous verrons qu'il domine totalement la génération d'harmoniques en impulsion brève pour des intensités lasers inférieures à quelques 10^{18} W/cm^2 .

2.2.3 Emission cohérente de sillage

L'émission cohérente de sillage d'harmoniques sur miroir plasma est un processus en trois étapes, qui sont résumées de façon qualitative sur la figure 2.14 (étape 1 : (a-b),

étapes 2 et 3 : (c) puis (d)) [26, 27]. Un champ laser intense en incidence oblique sur un miroir plasma induit à chaque cycle optique la formation des paquets d'électrons ultrabrefs à la surface du plasma, qui pénètrent dans la zone dense du plasma (Fig.2.14 (a-b)). En pénétrant dans la cible, ces électrons excitent de façon impulsionnelle des oscillations plasmas de haute fréquence dans leur sillage (Fig.2.14 (c)). Dans le plasma inhomogène formé par le gradient de densité à l'interface plasma-vide, ces oscillations collectives peuvent émettre de la lumière sous forme d'impulsions attosecondes (Fig.2.14 (d)). Cette émission périodique résulte en un train d'impulsions attosecondes, dont le spectre consiste en harmoniques de la fréquence laser. Dans cette section, je présente plus en détail ces différentes étapes, et je montre que ce mécanisme est effectivement confirmé de façon très précise par les simulations PIC .

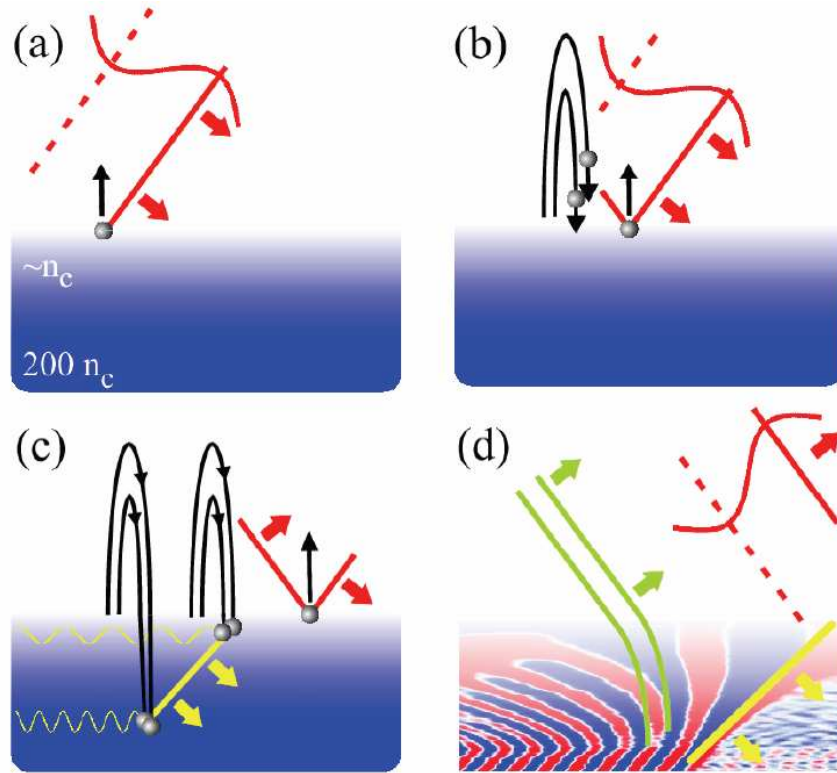


FIG. 2.14 – Schémas des différentes étapes de l'émission cohérente de sillage. (a) Les électrons autour de la surface critique sont arrachés au plasma par le laser. (b) Une partie de ces électrons est renvoyée vers le plasma. (c) Ces électrons se propagent dans le plasma en formant des pics de densité attosecondes. (d) Ces paquets d'électrons excitent des oscillations plasmas qui rayonnent en émettant une impulsion attoseconde par cycle.

Effet Brunel

La première étape de la figure 2.14 correspond à un mécanisme déjà identifié il y a plus

de 20 ans par un physicien Canadien, François Brunel [106], dans le cas d'un champ laser intense interagissant en polarisation p avec un plasma surdense présentant une interface plasma-vide suffisamment raide, c'est-à-dire telle que la longueur caractéristique du gradient de densité L soit plus petite que l'amplitude d'oscillation typique d'un électron dans le champ laser, $L \ll v_{osc}/\omega$ (avec v_{osc} la vitesse d'oscillation des électrons dans le champ laser, et ω la fréquence laser).

En 1987, Brunel montre que dans ces conditions, durant chaque cycle optique du laser, les électrons à la surface peuvent être arrachés au plasma et tirés dans le vide par la composante du champ électrique du laser normale à la surface de la cible, lorsque celle-ci pointe vers l'intérieur de la cible. Puis, un peu plus tard dans le cycle optique, ces électrons sont repoussés vers la cible par les effets combinés de la charge d'espace et du champ électrique oscillant du laser. Une grande partie de ces électrons pénètre alors dans la zone surdense du plasma, et ce faisant, échappe à l'effet du laser du fait de l'écrantage de ce dernier par le plasma surcritique. Ces électrons se propagent alors dans la cible, emportant ainsi l'énergie qui leur a été fournie par le champ laser.

Brunel mit essentiellement en avant le fait que, dans certains cas, ce processus cinétique constitue le mécanisme dominant d'absorption de l'énergie laser par le plasma [106]. Une caractéristique essentielle de ce mécanisme, qui n'avait pas été soulignée par Brunel, ni par les études qu'il a ensuite inspirées [107], réside dans le fait qu'une partie de ces électrons, en pénétrant dans le plasma, forment des paquets de charge extrêmement brefs et relativement denses. La formation de ces paquets est due au fait que, comme on le voit sur la figure 2.15, les premiers électrons qui pénètrent dans le plasma ont une énergie qui croît avec leur temps de retour. Les électrons les plus rapides vont donc finalement rattraper les plus lents, et il se produit alors un croisement de trajectoires, qui donne lieu à un pic de densité très localisé.

La formation d'un tel pic de densité est illustré à un instant donné sur la figure 2.16. Ainsi, à l'intérieur du plasma, la densité des électrons non-thermiques, ayant interagit avec le champ laser, présente un pic très prononcé d'amplitude $\approx 2n_c$, d'une longueur de $\approx \lambda/100$ (Fig. 2.16(b)). Sachant que ce pic se déplace à une vitesse de $\approx c/3$, la perturbation de densité induite par ce paquet en un point du plasma a une durée de ≈ 80 attosecondes, soit environ un trentième de la période optique d'un laser à 800 nm.

Excitation d'oscillations plasmas

Le paquet de charges créé par effet Brunel se propage alors dans un plasma thermique dense, où la longueur de Debye est extrêmement petite -de l'ordre de quelques Angström dans la partie la plus dense. Ce plasma va naturellement réagir de façon à écranter le champ créé par ce paquet de charges. Les électrons thermiques sont donc poussés hors de la zone où se trouve ce paquet, de façon à ce que le plasma reste à peu près neutre localement. Une fois le paquet de charges passé, ces électrons subissent un champ de rappel vers leur position de départ, et vont donc osciller autour de leur position initiale. Ce scénario décrit de façon qualitative comment le paquet de charge excite des oscillations plasmas dans le sillage de son trajet au sein du plasma.

Les densités typiques des miroirs plasmas créés à très haute intensité laser ($> 10^{15} \text{ W/cm}^2$) sont de l'ordre de $200n_c$ à $1000n_c$, selon la cible utilisée, pour un laser à

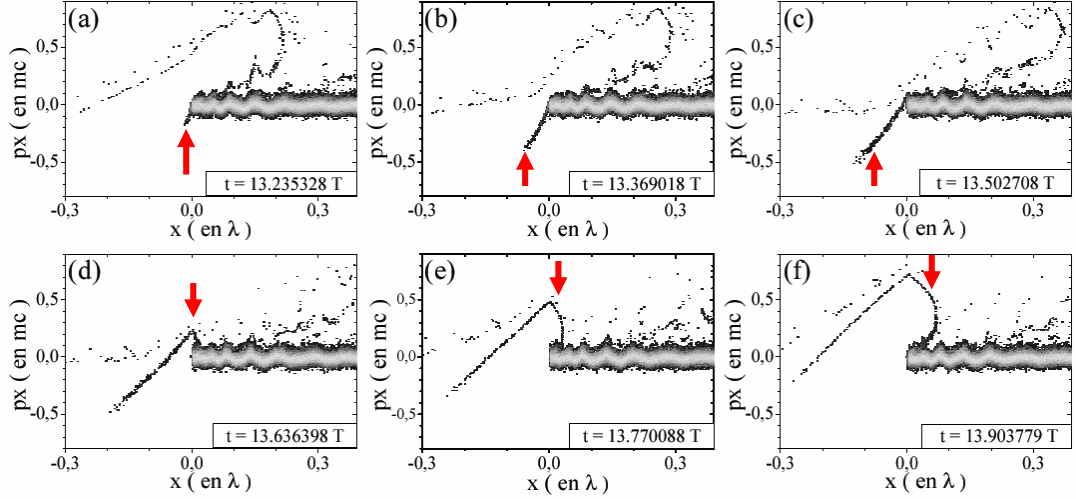


FIG. 2.15 – Espaces des phases (x, p_x) montrant les différentes étapes de "l'effet Brunel". De (a) à (f), on peut voir l'évolution de l'espace des phases durant une fraction de cycle laser. Les flèches rouges sur la rangée du haut pointent sur la partie de l'espace des phases correspondant aux électrons de Brunel issus de ce cycle (la partie supérieure de l'espace des phases, en $p_x > 0.1$, correspond aux électrons de Brunel accélérés au cycle précédent). Sur la rangée du bas, les flèches rouges pointent sur les électrons qui forment les paquets de charges ultrabrefs en pénétrant dans le plasma. Ces données sont issues d'une simulation EUTERPE à une intensité de $1.2 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$, et pour un plasma de densité $50n_c$.

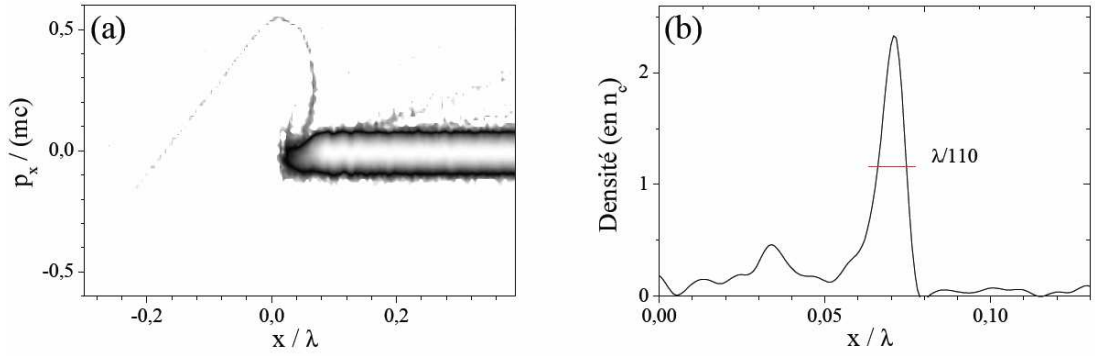


FIG. 2.16 – Pic de densité électronique dans l'espace des phases. (a) Espace des phases (x, p_x) à $t = 12.96T$. On voit une concentration d'électrons énergétiques ($p_x \gtrsim 0.1mc$) en $x \approx 0.07\lambda$. (b) Intégrale sur $p_x > 0.1mc$ de la densité électronique de l'espace des phases tracé en (a). Les électrons énergétiques sont concentrés sur une longueur inférieure à un centième de la longueur d'onde laser. Ces données sont issues d'une simulation EUTERPE à une intensité de $5.5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$, et pour un plasma de densité $225n_c$ avec un gradient de densité exponentiel de longueur caractéristique $\lambda/60$.

800 nm ($n_c = 1.2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$). Ces densités maximales correspondent à des fréquences plasmas allant de $14\omega_L$ à $30\omega_L$, soit des périodes plasmas allant de 80 à 180 as. La durée des paquets d'électrons de Brunel, estimée ci-dessus à 80 as, est donc inférieure ou comparable à la période de ces oscillations, qui sont par conséquent excitées en régime impulsif.

Supposons donc pour simplifier que l'on puisse considérer le paquet de charge créé pendant un cycle laser donné comme une fonction Delta de Dirac, arrivant au point (x, y) du plasma au temps $t_0(x, y)$. La fonction $t_0(x, y)$ dépend de la trajectoire selon x du pic de charge dans le plasma, qui est généralement un mouvement quasi-uniforme, légèrement accéléré. En première approximation, la phase des oscillations plasmas excitées dans le sillage de ce paquet au sein du gradient de densité à l'interface plasma-vide est donnée par :

$$\begin{aligned} \phi(x, t) &= 0, & \text{pour } t < t_0(x, y) \\ \phi(x, t) &= \omega_p(x)[t - t_0(x, y)], & \text{pour } t > t_0(x, y) \end{aligned} \quad (2.5)$$

où $\omega_p(x) \propto \sqrt{n_e(x)}$ est la fréquence plasma locale dans le gradient de densité. Si l'on suppose que les électrons se déplacent à vitesse constante v_p selon x , la trajectoire des pics de densité est décrite par

$$t_0(x, y) = x/v_p + y \sin \theta / c \quad (2.6)$$

La figure 2.17 montre que ce modèle analytique, bien qu'extrêmement simple, reproduit cependant de façon très satisfaisante l'allure des oscillations plasmas observées au sein du plasma dense dans les simulations PIC, dans le régime de l'émission cohérente de sillage. On observe sur cette figure que les fronts d'onde des oscillations plasmas dans le gradient de densité se courbent dans le temps, du fait de la dépendance en position x de la fréquence plasma ω_p . Voyons à présent comment ce comportement amène à l'émission de lumière par ces oscillations collectives de charge.

Emission de lumière sous forme d'impulsions attosecondes

Il est bien connu que dans un plasma homogène, les oscillations plasmas électroniques sont des ondes longitudinales, qui ne donnent pas lieu à l'émission d'ondes lumineuse, qui sont quant à elles transverses [108]. Un couplage entre ces deux types d'ondes est en revanche possible dans un plasma inhomogène, notamment par un processus appelé conversion linéaire de mode. L'exemple le plus connu est l'absorption résonante d'une onde laser dans un gradient de densité suffisamment long à la surface d'un plasma sur-critique [109]. Dans ce processus, une partie de l'énergie laser est convertie en oscillations plasmas au niveau de la densité critique. C'est le processus inverse qui nous intéresse ici : dans le gradient de densité à la surface, les oscillations plasmas excitées par les électrons de Brunel peuvent convertir une partie de leur énergie en onde lumineuse à la fréquence plasma. Il existe très peu de travaux théoriques sur ce processus inverse, qui implique des calculs très lourds [110, 111, 112, 113, 114] : aussi allons-nous nous contenter ici d'une description qualitative.

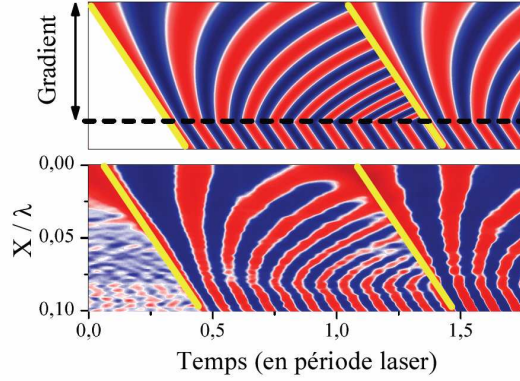


FIG. 2.17 – Comparaison entre le modèle analytique d'excitation des oscillations plasmas et une simulation particulière EUTERPE, dans un gradient exponentiel. Sur le panneau du haut on a tracé la fonction $\cos[\omega_p(x)](t - t_0(x, y))$ pour un y donné et une vitesse constante du paquet de charge $v_p = c/4$. Sur le panneau du bas, on a représenté le champ électrique E_x issu d'une simulation PIC (intensité laser 10^{17} W/cm^2 , densité maximale $120n_c$, gradient de longueur $\lambda/40$). Les échelles en x et en t sont les mêmes sur les deux cartes de contours. L'échelle de couleur est saturée pour bien mettre en évidence les fronts d'onde. Le bleu correspond à un champ négatif, le rouge à un champ positif et le blanc à 0. Sur les deux panneaux, les trajectoires des électrons énergétiques sont schématisées par des droites jaunes de pente v_p . Comme l'échelle temporelle s'étend sur plus d'une période laser, on observe les effets du passage de deux pics de densité successifs.

L'idée physique sous-jacente est qu'il ne peut y avoir un couplage efficace entre des oscillations plasmas de vecteur d'onde \mathbf{k}^p et de fréquence ω_p , et une onde électromagnétique de vecteur d'onde \mathbf{k} et de fréquence ω , que s'il y a à la fois résonance et accord de phase entre les deux ondes, c'est-à-dire $\omega = \omega_p$ et $\mathbf{k} = \mathbf{k}^p$. Les courbes de dispersion de ces deux types d'onde dans un plasma homogène ($\omega^2 = \omega_p^2 + c^2 k^2$ pour les ondes électromagnétiques et $\omega = \omega_p$ pour les oscillations plasmas) sont tracées sur la figure 2.18, qui montre que ces deux conditions ne peuvent être vérifiées que lorsque $k = k^p = 0$. En ce point, la vitesse de groupe de l'onde lumineuse est nulle, et cette onde ne se propage donc pas : ceci confirme que les oscillations plasma dans un milieu homogène ne peuvent émettre de lumière.

Considérons à présent le cas d'un gradient de densité entre le vide et un plasma. Une onde lumineuse de fréquence ω s'échappant du plasma avec un angle θ a un vecteur d'onde k_y le long de la surface constant en tout point, $k_y = (\omega/c) \sin \theta$. D'après les équations 2.5 et 2.6, le vecteur d'onde des oscillations plasmas excitées par les électrons de Brunel a également une composante constante selon y , $k_y^p = (\omega_p/c) \sin \theta$: ceci provient simplement du fait que la source de l'excitation est l'onde laser incidente, onde progressive le long de la surface de la cible dont le vitesse de phase dans cette direction est $c/\sin \theta$. Si la condition de résonance est satisfaite, c'est-à-dire $\omega = \omega_p$, l'accord de phase selon y est donc alors automatiquement vérifié.

Reste donc à satisfaire l'accord de phase selon x . On montre que la relation de

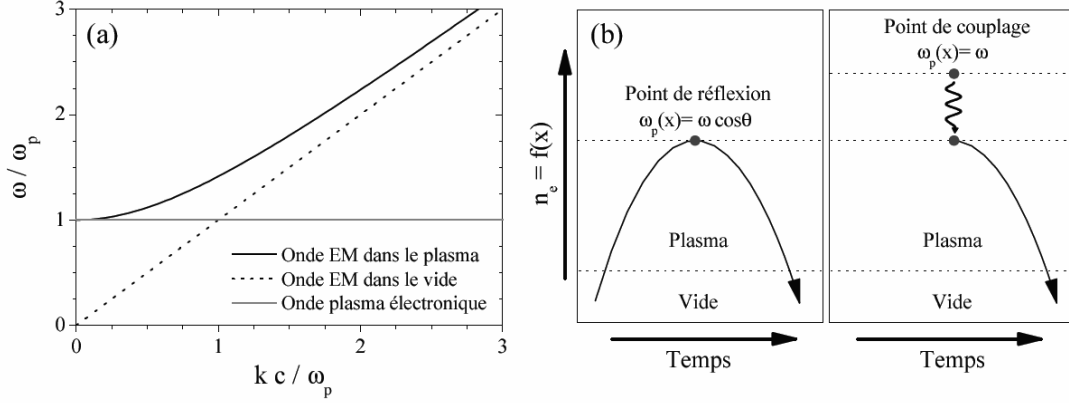


FIG. 2.18 – Couplage onde plasma-onde électromagnétique. (a) Relations de dispersion d'une onde électromagnétique (EM) dans le vide (pointillés) ou dans un plasma homogène (traits pleins) et d'une onde plasma (traits gris). Ces courbes montrent que l'onde EM et l'onde plasma ne peuvent se coupler qu'au point $(0, \omega)$. (b) Représentation schématique du couplage dans un plasma inhomogène. Le panneau de gauche illustre le cas d'une onde EM de pulsation ω qui traverse le gradient de densité et se réfléchit autour du point où $\omega_p(x) = \omega \cos \theta$. Sur le panneau de droite, on observe le couplage entre une onde plasma et une onde EM évanescente, au point où $\omega_p(x) = \omega$. Cette onde sort de la zone où elle est évanescente au point où $\omega_p(x) = \omega \cos \theta$. Elle suit alors un chemin similaire à celui de l'onde réfléchie sur le premier panneau, et sort du plasma en faisant un angle θ avec la normale.

dispersion locale pour k_x est [109]

$$\omega^2 \cos^2 \theta = \omega_p^2(x) + k_x^2 c^2 \quad (2.7)$$

Ainsi l'onde électromagnétique de fréquence ω est-elle réfléchie au point où $\omega \cos \theta = \omega_p(x)$, et elle ne peut atteindre le point de résonance où $\omega_p(x) = \omega$ que sous la forme d'une onde évanescente (voir le panneau (b) de la figure 2.18). En ce point, la partie réelle de k_x , qui détermine l'accord de phase, est nulle : pour avoir couplage, la composante selon x du vecteur d'onde des oscillations plasmas doit donc lui aussi être nul, $k_x^p = 0$, ce qui correspond à des fronts d'onde normaux à la surface de la cible.

Ce vecteur d'onde $k_x^p = \partial \phi / \partial x$ vaut d'après les équations (2.5) et (2.6) :

$$k_x^p = \frac{\omega}{c} \left(-t + \frac{2L + x}{v_p} + \frac{y \sin \theta}{c} \right) \quad (2.8)$$

La condition $k_x^p = 0$ définit donc le mouvement du point d'accord de phase (x_e, y_e) , où se produit l'émission lumineuse.

$$k_x^p = 0 \Rightarrow \frac{2L + x_e}{v_p} + \frac{y_e \sin \theta}{c} = t \quad (2.9)$$

Pour une fréquence ω donnée, x_e est déterminé par le condition $\omega_p(x_e) = \omega$, et le point d'émission se déplace dans le temps le long de la surface (axe y), avec une vitesse

de phase $c/\sin\theta$, identique à celle de l'onde laser. Ce mouvement du point source le long de la surface implique que la lumière émise se propage dans la direction de réflexion spéculaire de l'onde incidente.

Plaçons nous à présent en un point de la surface donné ($y = 0$ par exemple). Dans ce cas, on voit que la point d'émission bouge selon x et se déplace vers la partie dense du plasma à mesure que le temps passe. Dans le même temps, la fréquence de l'onde émise varie en suivant $\omega_p(x)$. La durée de l'émission est de l'ordre du temps mis par le point source pour traverser l'ensemble du gradient, soit L'/v_p où L' est la longueur totale du gradient de densité. Sachant que $L' \approx 50 \text{ nm}$ et $v_p \approx c/3$ typiquement, $L'/v_p \approx 500 \text{ as}$: l'émission lumineuse se fait sous forme d'impulsions de quelques centaines d'attosecondes.

La trajectoire $x_e(t)$ du point d'émission à y donné est représentée sur la figure 2.19, superposée à une carte des fronts d'onde des oscillations plasmas. On voit sur cette figure que, comme nous l'avons souligné, le point d'émission suit l'endroit où les fronts d'onde des oscillations plasmas sont normaux à la surface de la cible. Une telle orientation se produit du fait de la courbure que développent les fronts d'onde après l'excitation impulsionnelle par les électrons de Brunel, courbure qui provient de la dépendance en x de ω_p .

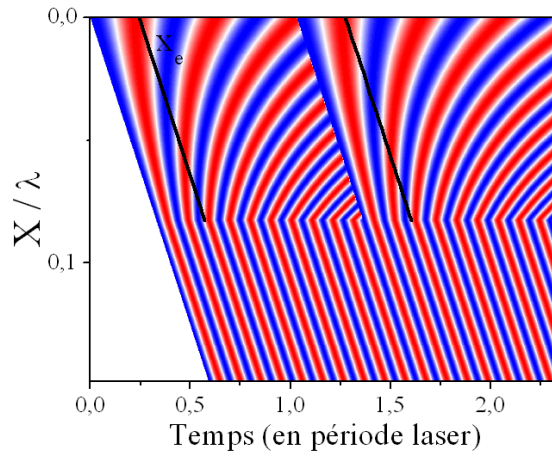


FIG. 2.19 – Trajectoire $x_e(t)$ du point d'émission CWE dans le gradient. La carte de couleur représente les variations de $\phi(x, t) = \sin\omega_p(x)(t - x/v_p)$ dans le plasma. Les droites noires présentent $x_e(t)$, ensemble des points où les fronts d'onde des oscillations plasmas ont une tangente normale à la cible ($k_x = \partial\phi/\partial x = 0$), pour deux cycles lasers successifs.

La fonction $x_e(t)$ traduit le fait que les ondes plasmas de différentes fréquences sont excitées à différents instants par les électrons de Brunel : de ce fait, ces impulsions attosecondes ont une dérive de fréquence. Cette dérive augmente légèrement pendant la phase de propagation de l'impulsion attoseconde à travers le gradient, d'une part parce que les fréquences les plus élevées ont un trajet légèrement plus long à parcourir dans le plasma pour atteindre le vide, et d'autre part du fait de la dispersion induite par le plasma durant cette propagation.

Validation par les simulations PIC

L'ensemble de ce scénario est parfaitement confirmé par les simulations PIC. La figure 2.20 présente les résultats d'une simulation CALDER en deux dimensions, dans le régime CWE (voir conditions physiques dans la légende). Sur le graphe de gauche, on a reporté une carte en (x, y) du champ électrique E_x , qui a une allure similaire à celle portée sur la figure 2.17, car y et t jouent des rôles équivalents pour une onde plane incidente (t croissant correspond à y décroissant). La distribution jaune montre la densité d'électrons énergétiques dans le plasma. On voit clairement que c'est bien la perturbation de densité induite par ces électrons qui a excité les oscillations plasmas. Enfin, la carte en magenta représente l'intensité de l'impulsion attoseconde émise. Comme attendu, on a bien émission d'une impulsion attoseconde légèrement après le passage des électrons de Brunel, et cette émission se fait lorsque les fronts d'onde de l'onde plasma sont à peu près normaux à la surface de la cible.

La figure 2.20(b) présente le spectre du rayonnement électromagnétique calculé par le code PIC, en fonction de la position x le long de la normale à la cible. Jusqu'à présent, nous avons analysé l'émission à l'échelle d'un cycle optique du laser. Le spectre de cette émission est bien sûr continu, et couvre l'ensemble des fréquences plasmas $\omega_p > \omega_L$ rencontrées dans le gradient. Cette émission se répète néanmoins de façon identique à chaque cycle optique de l'impulsion laser : le spectre total de l'émission va donc consister en harmoniques de la fréquence laser. C'est effectivement ce qui est observé sur la figure 2.20(b). Ce spectre présente une coupure au niveau de la fréquence plasma maximale de la cible (ici $\approx 15\omega_L$), ce qui est bien évidemment une caractéristique essentielle de l'émission cohérente de sillage. Comme attendu, on constate que chaque harmonique provient d'un endroit différent du gradient de densité, tel que $\omega_p(x) = n\omega_L$.

Pour finir, la figure 2.21 présente l'allure du champ électromagnétique réfléchi, dans un cas où la génération d'harmoniques est exclusivement due au mécanisme CWE. On constate que la modification du champ induite par l'émission CWE consiste simplement en de petites "bosses" au sein de l'onde initialement sinusoïdale. La différence avec la distorsion induite par l'effet Doppler (Fig.2.13) est frappante. Ainsi, la pratique montre qu'il est très simple de distinguer ces deux mécanismes dans les simulations, simplement en observant l'allure du champ réfléchi.

2.3 Mise en évidence expérimentale

Après avoir détaillé deux mécanismes de génération d'harmoniques d'ordre élevé sur miroir plasma, voyons à présent quelles sont les observations expérimentales qui en prouvent la pertinence. Un résultat essentiel des travaux réalisés dans notre groupe durant ces 4 dernières années a été de montrer que les harmoniques associées à ces deux mécanismes ont des propriétés très différentes, ce qui permet de les distinguer sans ambiguïté expérimentalement [27] (article en annexe B7). Ces propriétés différentes sont les suivantes :

1. La gamme spectrale couverte par les harmoniques.
2. La dépendance en intensité laser du signal harmonique.

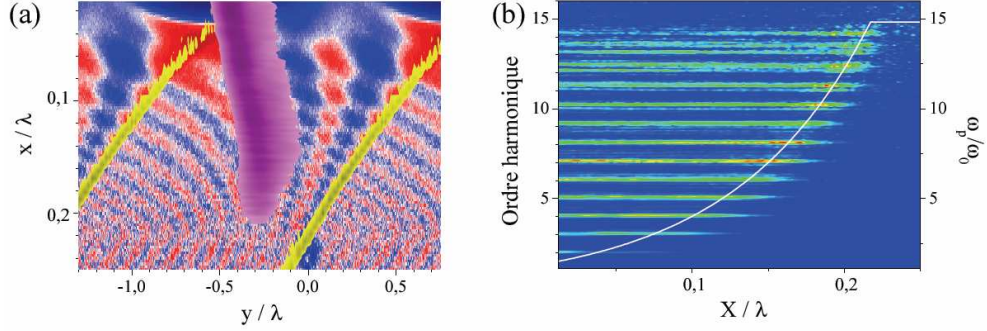


FIG. 2.20 – Mécanisme CWE observé dans une simulation PIC CALDER 2D. Le champ E_x , représenté en échelle de couleur allant du rouge au bleu, permet d'observer les oscillations plasmas. On a superposé en jaune sur cette carte de champ la densité des électrons tels que $p_x > 0.28mc$. L'échelle de couleur jaune va de $2.5n_c$ à $11n_c$. La surface du plasma se situe en $x = 0$ et le laser se déplace dans le sens des y positifs. Le front électronique au centre de cette figure est responsable de l'excitation des oscillations plasmas au-dessus du lui. Les autres oscillations ont été excitées lors du cycle laser précédent. Sur ces deux cartes, on a superposé l'enveloppe du champ B_z filtré entre $4\omega_L$ et $14\omega_L$ (échelle de couleur pourpre). En (b) on a tracé une carte de spectres de B_z calculés en chaque point de l'axe des abscisses. Afin de pouvoir visualiser l'ensemble des fréquences avec le même contraste, on a appliqué une correction sur les spectres. L'échelle de couleur utilisée est linéaire. Intensité laser $5.5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$, densité maximale $220n_c$, gradient de $\lambda/25$.

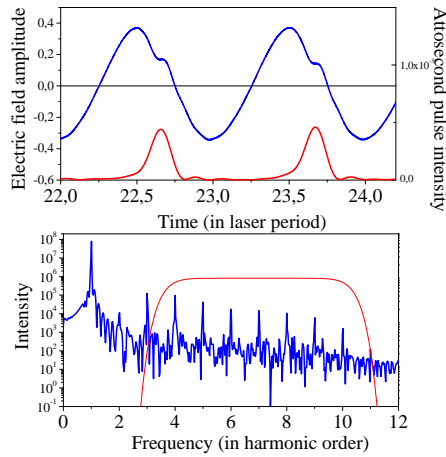


FIG. 2.21 – (a) Champ réfléchi par un miroir plasma dans le cas de génération d'harmoniques par CWE (zoom sur deux cycles optiques). Le champ incident est sinusoïdal. Les conditions physiques sont les mêmes que dans la figure 2.20. La courbe rouge correspond au profil d'intensité du train d'impulsions attosecondes obtenu en filtrant un groupe d'harmoniques dans le spectre. Ce spectre est présenté en (b), ainsi que le filtre utilisé pour obtenir ce train.

3. La largeur spectrale des harmoniques individuelles.
4. La divergence du faisceau harmonique.

Nous présentons dans cette section les mesures de ces différentes caractéristiques et montrons comment elles permettent de discriminer les deux processus de génération. Notons que les 3 premières propriétés ont été mesurées par notre groupe, alors que la différence de divergence entre harmoniques CWE et relativistes a récemment été observée avec le laser ASTRA du Rutherford Appleton Laboratory en Grande-Bretagne [115], après avoir été prédite théoriquement [116] et observée numériquement par notre groupe [117].

2.3.1 Extension du spectre harmonique

Cas de l'émission cohérente de sillage

Une caractéristique essentielle de l'émission cohérente de sillage est de générer un spectre d'harmoniques qui s'étend jusqu'à la fréquence plasma maximale ω_p^{max} du plasma généré par le laser sur la cible, qui vaut $\omega_p^{max} = \sqrt{n_e^{max} e^2 / m \epsilon_0}$, où n_e^{max} est la densité électronique maximale de ce plasma. A haut contraste temporel et avec des impulsions laser ultrabrèves, l'expansion du plasma formé à la surface de la cible est très faible, et on a alors $n_e^{max} = p n_e^s$, où n_e^s est la densité électronique de la cible solide initiale, et p le taux d'ionisation dans la partie dense de la cible, résultant de l'interaction avec le laser. Un calcul rigoureux de p est extrêmement complexe. Néanmoins, pour des cibles constituées d'éléments de numéros atomiques suffisamment faibles (telles que la silice SiO_2 , le plastique CH ou l'aluminium Al), on peut considérer que $p \approx 1$ pour des intensités lasers supérieures à 10^{17} W/cm^2 .

Pour mettre en évidence le mécanisme d'émission CWE expérimentalement, nous avons donc généré des spectres harmoniques avec des cibles de différentes densités électroniques. Pour des intensités allant jusqu'à quelques 10^{18} W/cm^2 , la fréquence de coupure du spectre harmonique observée expérimentalement varie comme la fréquence plasma maximale attendue pour la cible, notamment dans le cas des cibles de plastique, de silice et d'aluminium (Fig. 2.22 et tableau 2.1). Ceci indique clairement que le mécanisme CWE domine la génération d'harmoniques dans ce régime.

Notons que le cas de l'or, également présenté sur la figure 2.22, est plus délicat à interpréter : pour une cible de numéro atomique aussi élevé ($Z=79$), p est significativement différent de 1, et il est difficile d'en déterminer la valeur exacte que ce soit par le calcul ou par une mesure indépendante. En supposant que le mécanisme de génération est bien le CWE, la coupure du spectre harmonique de la figure 2.22 à $n \approx 26$ indique un taux d'ionisation $p \approx 25\%$, ce qui semble tout-à-fait réaliste à l'intensité considérée.

Cas de la génération par effet Doppler

Contrairement au cas du CWE, il n'y a a priori pas de limite fixe à l'ordre harmonique maximum pouvant être généré par effet Doppler. Pour ce mécanisme, la fréquence de coupure dépend de la vitesse maximale de la surface du plasma, qui augmente avec l'intensité laser.

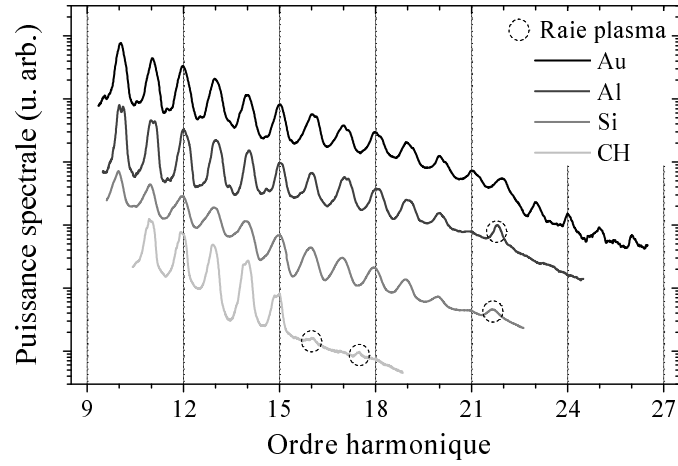


FIG. 2.22 – Spectres d'harmoniques de sillage obtenus en utilisant des cibles faites de différents matériaux et un éclairage crête de $3 \times 10^{18} Wcm^{-2}$. Les cercles indiquent les positions de différentes raies dues à l'émission incohérente du plasma. Afin de faciliter leur comparaison, les différents spectres ont été décalés selon l'axe des ordonnées

Matériaux	<i>CH</i>	<i>SiO₂</i>	<i>Al</i>	<i>Au</i>
n_e max. en cm^{-3}	3.8×10^{23}	6.8×10^{23}	7.8×10^{23}	4.7×10^{24}
ω_p max. en ω_{laser}	15	20	21	53
Ordre max. observé	15	20 – 21	20 – 21	> 26

TAB. 2.1 – Densité maximale (matière totalement ionisée), fréquence plasma correspondante (ω_p max), et fréquence de coupure mesurée pour des cibles en plastique, silice, aluminium et or

Afin d'observer ce mécanisme, nous avons donc augmenté l'intensité laser au delà de quelques 10^{18} W/cm^2 . Ceci a nécessité l'emploi du laser UH10, et dans ces conditions l'emploi d'un double miroir plasma était absolument indispensable pour atteindre un contraste suffisant. Au delà d'environ $5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$, nous avons observé la brusque apparition de nombreuses harmoniques au delà de la fréquence plasma de la cible (Fig. 2.23(a)). Etant donné que ces harmoniques apparaissent précisément en voisinage du seuil d'intensité correspondant au passage à un régime d'interaction relativiste, il est tentant d'attribuer ces harmoniques à l'effet Doppler. Nous verrons dans cette section que plusieurs autres observations viennent étayer cette hypothèse.

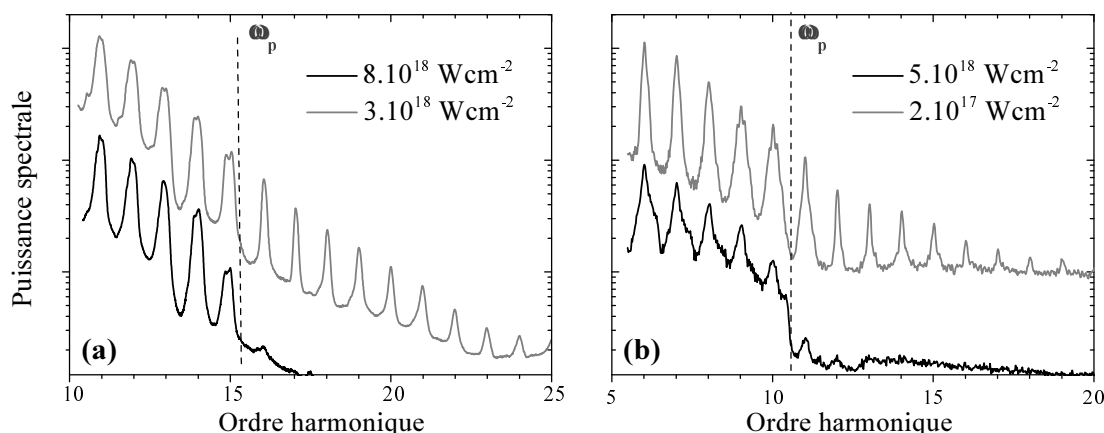


FIG. 2.23 – Spectres d'harmoniques relativistes et non-relativistes. (a) Courbes expérimentales obtenues avec une cible de plastique pour des éclaircissements de $3 \times 10^{18} \text{ Wcm}^{-2}$ et $8 \times 10^{18} \text{ Wcm}^{-2}$. (b) Courbes issues de simulations 2D CALDER effectuées pour un plasma de $110n_c$. Ces spectres ont été intégrés angulairement.

2.3.2 Dépendance en intensité laser

Cas de l'émission cohérente de sillage

La seconde caractéristique essentielle de l'émission CWE est la quasi-linéarité du signal harmonique généré avec l'intensité laser, toutes choses étant égales par ailleurs. Cette propriété apparaît sur la figure 2.24, qui présente le signal harmonique CWE obtenu dans des simulations EUTERPE, intégré sur les ordres 4 à 15, en fonction de l'intensité laser : on observe clairement que l'émission cohérente de sillage est un mécanisme quasiment linéaire en éclaircissement laser, ce qui est remarquable pour un processus permettant de générer des harmoniques d'ordre élevé. Notons que la valeur exacte de l'exposant de la loi de puissance peut varier significativement en fonction des paramètres de la simulation (densité, longueur de gradient, etc...), tout en restant toujours de l'ordre de l'unité.

Cette propriété quelque peu surprenante de l'émission CWE se comprend bien de façon intuitive. En effet, l'amplitude du champ rayonné est directement proportionnelle à l'amplitude des oscillations plasma, elle-même proportionnelle au nombre d'électrons

dans le pic de densité créé par les électrons de Brunel. Or le nombre d'électrons de Brunel varie linéairement avec l'amplitude du champ laser. Les trois étapes du processus étant à peu près linéaire, il en résulte que l'amplitude des harmoniques est finalement quasiment proportionnelle à celle du champ laser incident.

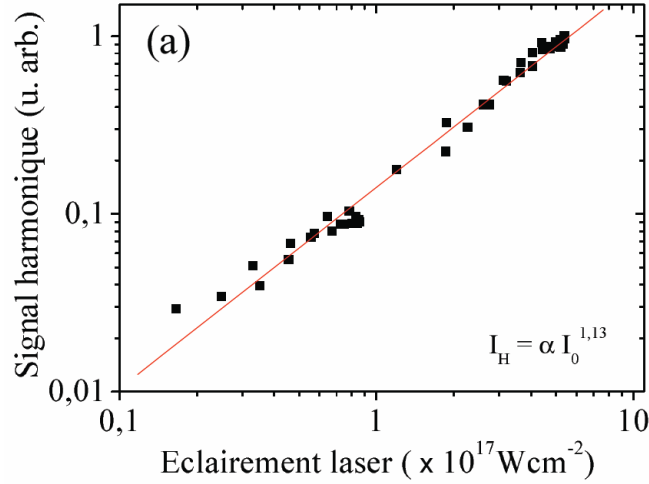


FIG. 2.24 – Évolution du signal harmonique CWE avec l'éclairement laser dans les simulations numériques. Deux séries de points sont représentées sur ce panneau, une qui permet d'observer l'évolution du signal jusqu'à $10^{17} \text{ W cm}^{-2}$, l'autre jusqu'à $6 \cdot 10^{17} \text{ W cm}^{-2}$. Chaque série a été obtenue en mesurant la variation du signal dans les harmoniques 4 à 15, au cours d'une simulation où l'éclairement laser varie dans le temps comme un sinus au carré. La courbe de tendance calculée en utilisant l'ensemble des points montre que le signal harmonique augmente avec le signal incident à la puissance 1.13 ± 0.02 . Les ions sont supposés fixes pour éviter toute influence de la longueur de gradient.

A des intensités inférieures à quelques 10^{18} W/cm^2 , la dépendance en intensité laser du signal harmonique mesurée expérimentalement est aussi quasi-linéaire (Fig. 2.25) : ceci est une indication supplémentaire du fait que dans cette gamme l'émission est dominée par le mécanisme CWE. Soulignons également que le fait que l'on puisse générer des harmoniques à des éclairements de quelques 10^{15} W/cm^2 seulement fût une véritable surprise. Avant cette expérience, aucune observation d'harmoniques générées sur cible solide à partir d'un laser femtoseconde, n'avait en effet été reportée, à un éclairement inférieur à $10^{17} \text{ W cm}^{-2}$. A ces éclairements, l'émission cohérente de sillage est très clairement le seul mécanisme de génération observé dans les simulations PIC, ce qui ne laisse aucun doute sur l'origine des harmoniques observées expérimentalement dans le régime d'intensité des figures 2.22 et 2.25.

Cas de l'émission par effet Doppler

Nous avons vu que pour observer des harmoniques générées par effet Doppler, il est nécessaire d'augmenter l'intensité laser par rapport aux mesures de la figure 2.25. Nous avons tracé sur la figure 2.26, une carte de contour permettant d'observer la variation du spectre harmonique avec l'éclairement incident au-dessus et en-dessous du seuil relativiste. La cible utilisée étant en plastique, on sait grâce à la figure 2.23, que les

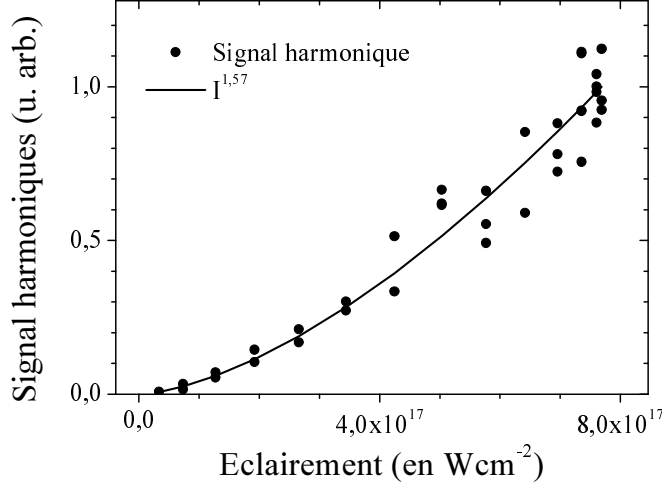


FIG. 2.25 – Dépendance en intensité du signal harmonique intégré spatialement en régime non-relativiste ($3 \times 10^{16} \text{Wcm}^{-2} < I < 8 \times 10^{17} \text{Wcm}^{-2}$), mesuré expérimentalement. Le coefficient de corrélation de la courbe de tendance est de 0.99. Cette courbe a été obtenue en faisant varier la polarisation du laser et en intégrant le profil spatial des harmoniques transmises par un filtre d'étain (harmoniques 10 à 15).

harmoniques de fréquence inférieure à $15\omega_0$ sont essentiellement produites par émission cohérente de sillage et que celles au delà de cette fréquence sont générées par le mécanisme relativiste. On voit que ces deux familles d'harmoniques se comportent très différemment lorsque l'on réduit l'éclairement. On observe en effet que le signal harmonique en dessous de l'ordre 15 varie très peu avec I , comme attendu pour les harmoniques de sillage, alors que les harmoniques au delà de l'ordre 15 disparaissent dès que l'on réduit l'éclairement. Ainsi les harmoniques élevées ont un comportement fortement non-linéaire près du seuil relativiste, ce qui est caractéristique des harmoniques produites par effet Doppler. Ces comportements très différents fournissent un moyen supplémentaire de différencier les harmoniques générées par les deux mécanismes.

2.3.3 Largeur spectrale des harmoniques individuelles

Une différence frappante entre les deux familles d'harmoniques apparaît sur les spectres de la figure 2.23 : les harmoniques CWE ont clairement une largeur spectrale beaucoup plus importante que les harmoniques Doppler. Ceci est à première vue surprenant : étant données les dépendances en éclairement laser de ces deux mécanismes, on s'attend à ce que l'émission relativiste dure moins longtemps que l'émission de sillage. Or en l'absence d'une phase spectrale d'ordre 2 ou plus, la largeur spectrale d'une harmonique individuelle est inversement proportionnelle à la durée de l'émission. On s'attendrait donc au contraire à observer des largeurs spectrales plus importantes dans le cas des harmoniques relativistes.

La solution à ce problème réside bien entendu dans les propriétés de phase des harmoniques, qui sont omises dans ce raisonnement trop simplifié. Comme cela sera

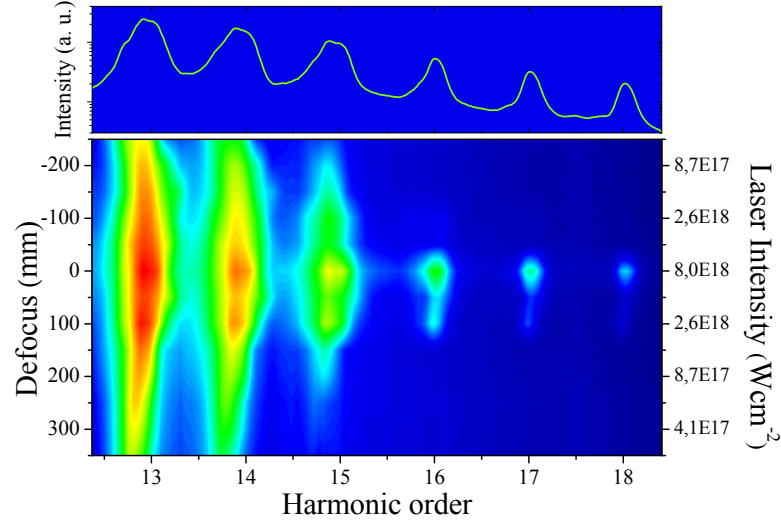


FIG. 2.26 – Dépendance en intensité du spectre harmonique généré sur une cible de plastique, en régimes relativiste et non-relativiste. La carte de contours du panneau central montre la variation avec l'éclairement I de l'intensité des harmoniques 13 à 17 en échelle logarithmique. Elle a été construite à partir de spectres moyennés sur 5 tirs pour 10 éclairements différents. I était modifié en variant la distance entre la surface de la cible et le miroir parabolique (voir échelle de droite). Sur le panneau du haut, on observe le spectre harmonique obtenu pour l'éclairement maximal ($I = 8 \times 10^{18} \text{W cm}^{-2}$).

détaillé dans la section suivante, l'idée est que la phase des harmoniques CWE dépend assez fortement de l'intensité laser, alors que celle des harmoniques relativistes n'en dépend quasiment pas. Etant donné que l'intensité laser varie dans le temps, selon l'enveloppe de l'impulsion génératrice, les harmoniques CWE ont donc une forte phase temporelle -autrement dit, elles sont loin de leur limite de Fourier- contrairement aux harmoniques Doppler. Cette phase temporelle résulte en un élargissement spectral des harmoniques, qui est à l'origine de la différence observée entre harmoniques CWE et Doppler.

2.3.4 Divergence du signal harmonique

La dépendance en intensité de la phase harmonique, dont nous venons de présenter les effets dans le domaine spectral, a une conséquence analogue dans le domaine spatial. En effet, au niveau de la cible, l'intensité laser ne varie pas seulement temporellement, mais aussi spatialement. Si le processus de génération présente une phase dépendante de l'intensité laser, la variation spatiale de l'intensité laser va induire une phase spatiale sur le faisceau harmonique, et, à taille de source égale, cette phase spatiale résulte en une augmentation de la divergence du faisceau.

Ainsi, de la même façon que les harmoniques relativistes ont une largeur spectrale plus faible que les CWE malgré une durée d'émission a priori plus faible, on s'attend à ce qu'elles aient également une divergence plus faible malgré une taille de source plus petite. C'est effectivement ce qui est observé dans les simulations numériques (Fig.

2.27). La confirmation expérimentale de cette différence essentielle entre les deux familles d'harmoniques, obtenue par le groupe de M. Zepf sur le laser ASTRA [115], est présentée dans la partie conclusion et perspectives de ce chapitre.

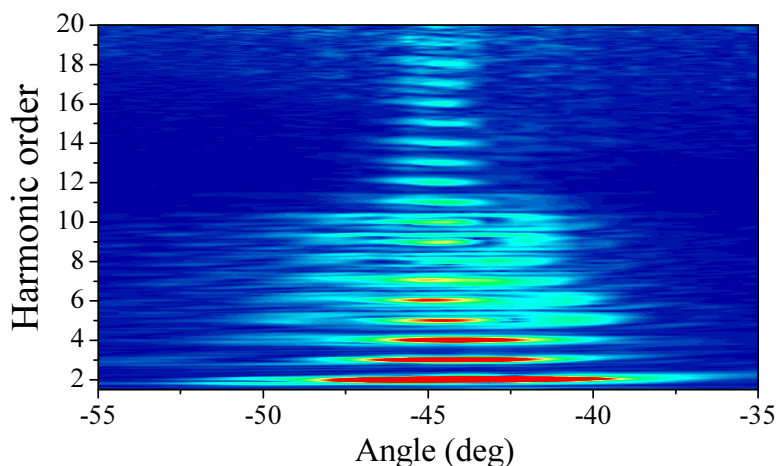


FIG. 2.27 – Manifestation dans le domaine spatial de la phase harmonique : spectre harmonique produit en fonction de l'angle d'émission, issue d'une simulation CALDER 2D. Ce spectre a été corrigé par une fonction $T(\omega)$ pour que l'on puisse évaluer simultanément l'ouverture angulaire de l'ensemble des harmoniques. Un angle de -45° correspond à la direction spéculaire et l'ouverture angulaire du laser est de $\pm 7.3^\circ$. Dans cette simulation, la densité du plasma est de $110n_c$: les harmoniques au delà de l'ordre 10 sont donc nécessairement des harmoniques relativistes. Sous l'ordre 11, on observe une superposition d'harmoniques CWE et Doppler, qui donne lieu à des interférences.

2.3.5 Synthèse et comparaison aux simulations numériques

En résumé, nous avons prouvé dans cette section qu'il est possible de produire expérimentalement des harmoniques de sillage et des harmoniques relativistes. Nous avons également montré que l'on peut facilement différencier ces deux familles d'harmoniques par le biais de l'extension du spectre, de la dépendance en intensité du signal, de la largeur des harmoniques individuelles et de leur divergence.

Pour conclure, il est important de souligner que toutes ces propriétés sont bien reproduites par les simulations PIC, comme le montrent les spectres simulés de la figure 2.23(b). On retrouve notamment les deux gammes spectrales, de part et d'autre de ω_p^{max} , où dominent les deux familles d'harmoniques à intensité faiblement relativiste, ainsi que les différences de largeurs spectrales entre ces deux types d'harmoniques. Le comportement en intensité est également reproduit de façon qualitative : néanmoins, pour faire totalement disparaître les harmoniques relativistes dans les simulations, il est nécessaire de baisser l'intensité laser plus fortement qu'observé expérimentalement. Cette différence est sans aucun doute due au fait que la simulation est réalisée en géométrie 2D, et non 3D comme la mesure expérimentale.

Comme nous l'avons vu, on peut très clairement identifier l'origine des différentes harmoniques dans ces simulations. Cette analyse confirme sans ambiguïté les méca-

nismes à l'origine de ces deux familles d'harmoniques.

2.4 Etude des propriétés de phase des harmoniques

Comme souligné précédemment, les harmoniques CWE présentent des largeurs spectrales et des divergences importantes, plus grandes que celles des harmoniques Doppler. Dans cette section, nous allons tout d'abord voir quelles observations expérimentales indiquent que ce sont des effets de phase qui sont responsables de ces propriétés [26]. En utilisant les simulations PIC, on peut comprendre ces effets de phase en terme de dynamique des électrons du plasma [116] (article en annexe B8). Enfin, nous verrons comment on peut mesurer ces effets de façon relativement directe, en utilisant une technique interférométrique [118](article en annexe B9).

2.4.1 Mise en évidence expérimentale de la phase intrinsèque

Notion de phase induite à la génération

Avant même d'avoir identifié le mécanisme CWE, nous avons émis l'hypothèse que des effets de phase étaient à l'origine de la largeur spectrale importante des harmoniques mesurées sur UH10. L'idée est que, à durée d'émission égale, une harmonique possédant une phase temporelle $\phi_n^G(t)$ non-linéaire en temps, induite au cours de la génération, aura une largeur spectrale plus importante. De façon générale, cette phase $\phi_n^G(t)$ peut provenir à la fois d'une évolution temporelle du milieu de génération -dans le cas présent, l'expansion du plasma- qui affecterait la phase des harmoniques émises, soit d'une dépendance de la phase harmonique avec l'intensité laser -qui est elle-même une fonction du temps. Le terme $\phi_n^i(t)$ associé à ce deuxième effet est généralement appelée phase intrinsèque.

Mise en évidence expérimentale : mesures spectrales

Une façon très simple de mettre en évidence de tels effets de phase, déjà utilisée pour la génération d'harmoniques dans les gaz [119, 120], consiste à étudier l'effet d'une phase initiale $\phi_L(t)$ appliquée sur l'impulsion laser génératrice. Dans ce cas, la phase temporelle totale $\phi_n(t)$ de l'harmonique n sera donnée par [121] :

$$\phi_n(t) = \phi_n^G(t) + n\phi_L(t) \quad (2.10)$$

Ainsi, en appliquant une phase $\phi_L(t)$ adaptée, on voit qu'il est éventuellement possible de compenser la phase de génération $\phi_n^G(t)$, et donc de réduire la largeur spectrale des harmoniques, si celle-ci est effectivement dominée par des effets de phase.

C'est une mesure de ce type qui nous a fourni la première confirmation expérimentale de l'importance des effets de phase dans le mécanisme CWE. Avec le laser LUCA, nous avons mesuré des spectres CWE (cf. Fig. 2.28) pour des impulsions lasers présentant différentes dérives de fréquences linéaires en temps -c'est-à-dire une phase temporelle quadratique [26]. On observe clairement que cette dérive de fréquence modifie la largeur spectrale des harmoniques individuelles. Cet effet dépend du signe de la dérive de

fréquence : une dérive du bleu vers le rouge induit un élargissement spectral supplémentaire, alors qu'une dérive du rouge vers le bleu permet d'affiner les harmoniques. Nous avons alors interprété cette asymétrie comme résultant d'une phase temporelle $\phi_n^G(t)$ telle que $\partial^2 \phi_n^G(t)/\partial t^2 < 0$, induite à la génération, et que l'on parvient à compenser au moins partiellement en appliquant une phase quadratique positive sur le laser.

Nous avons ultérieurement pu effectuer un nombre de mesures beaucoup plus important sur le laser UH10, et avons ainsi confirmé cet effet de façon plus quantitative (Fig. 2.29) [116]. Remarquons cependant que la phase temporelle $\phi_L(t)$ qui minimise la largeur spectrale des harmoniques était beaucoup plus grande lors de cette deuxième série d'expérience qu'avec le laser LUCA. Ceci provient probablement des conditions physiques différentes de l'expérience (intensité laser et contraste notamment), mais jusqu'à présent nous n'avons pas trouvé d'explication quantitativement satisfaisante à cet écart.

Mise en évidence expérimentale : mesures spatiales

Nous avons vu précédemment que les effets dans le domaine spectral de la dépendance en intensité de la phase ont un analogue direct dans le domaine spatial, qui se traduit par une augmentation de la divergence harmoniques. Toujours par analogie avec le domaine spectral, il devrait être possible de compenser cet effet de phase spatiale et de réduire la divergence du faisceau harmonique, en appliquant une phase spatiale appropriée sur le faisceau laser.

En pratique, une phase spatiale quadratique positive ou négative s'obtient très simplement en écartant la surface de la cible du meilleur foyer du laser, de façon à effectuer la génération avec un faisceau convergent ou divergent. Une telle mesure, réalisée avec le laser UH10, est présentée sur la figure 2.30 [116]. On observe clairement une réduction de la divergence des harmoniques lorsqu'elles sont générées avec un faisceau laser convergent, alors qu'au contraire elle augmente pour un faisceau divergent. Ceci est une nouvelle indication de l'existence d'une phase -spatiale dans ce cas- induite à la génération. Le signe de cette phase est bien le même que celui déduit des mesures spectrales.

Cette expérience sur la divergence des harmoniques illustre un point très important et nouveau en physique des plasmas. Il s'agit de la possibilité d'utiliser la phase du champ laser pour obtenir un certain degré de contrôle sur l'interaction avec un plasma, et par conséquent sur les propriétés du rayonnement émis par ce plasma. À l'avenir, on peut penser que ce paramètre de phase, qui a jusqu'à présent été négligé en physique de l'interaction laser-plasma, va jouer un rôle important en régime d'impulsions ultrabrèves et ultraintenses.

Une mesure de la phase induite à la génération ?

Il est tentant de chercher à utiliser de telles mesures pour réellement mesurer la phase de génération $\phi_n^G(t)$. Bien que possible en principe, ceci s'avère en pratique difficile et imprécis. En effet, pour réaliser ces mesures, c'est en fait une phase *spectrale* que l'on applique sur l'impulsion laser, tout en gardant une intensité spectrale fixe -par exemple

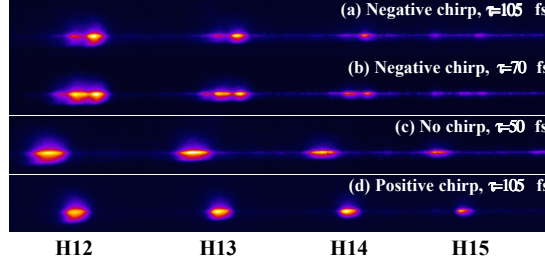


FIG. 2.28 – Profils spectraux normalisés pour les harmoniques CWE d'ordre 12 à 15, pour différentes dérives de fréquences de l'impulsion incidente. Pour ces mesures, l'énergie laser est maintenue constante, et correspond à $I\lambda^2 = 3 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2 \mu\text{m}^2$, pour une impulsion de 50 fs.

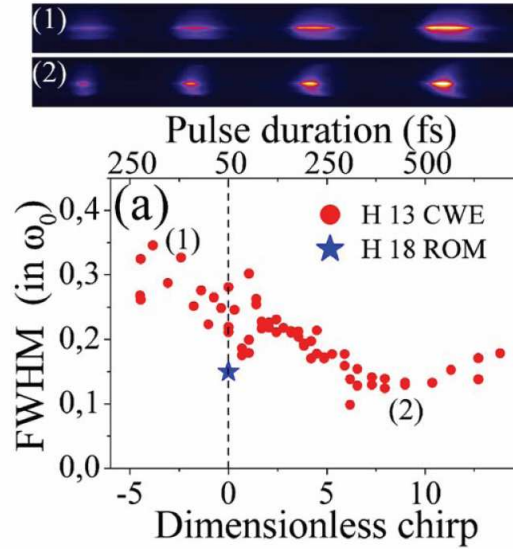


FIG. 2.29 – Mise en évidence expérimentale de la phase spectrale des harmoniques de sillage. (a) Expérience sur le laser UHI. Les cercles pleins permettent d'observer l'évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur de l'harmonique 13, en fonction du paramètre ξ pour $I_{max} = 10^{17} \text{ Wcm}^{-2}$. La dérive de fréquence laser introduite se traduit par un allongement de la durée de l'impulsion (voir l'axe supérieur). Les deux images au dessus de la figure correspondent aux spectres bruts obtenus pour $\xi = -2.4$ et $\xi = 9$. Enfin, l'étoile permet de comparer la largeur de l'harmonique 13 avec celle de l'harmonique 18 obtenue sur une cible de plastique pour $I_{max} = 9 \times 10^{18} \text{ Wcm}^{-2}$ (harmonique relativiste). La paramètre appelé "dimensionless chirp" ξ est défini par $\tau = \tau_{TFL} \sqrt{1 + \xi^2}$, où τ est la durée d'impulsion et τ_{TFL} la limite de Fourier.

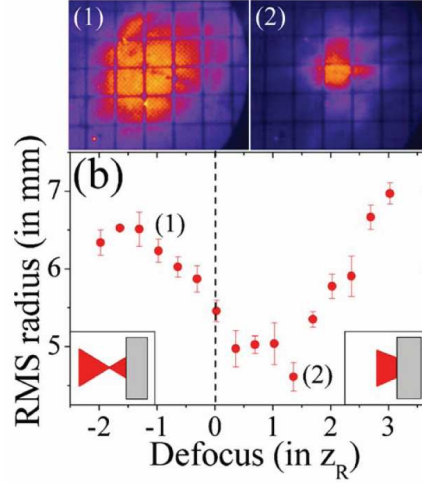


FIG. 2.30 – Mise en évidence expérimentale de la phase spatiale. La courbe permet d’observer la variation du rayon du faisceau harmonique généré sur une cible de plastique ($n < 15$) et filtré par une feuille d’aluminium de 100nm , en fonction de la distance entre la cible et le foyer du faisceau laser. La demi-divergence du laser est de 2.3° . Un défocal négatif correspond à un point focal situé devant la cible. Les deux images au dessus de la courbe sont les profils spatiaux obtenus les positions $z = -1.3z_R$ et $z = 1.35z_R$ où $z_R = \pi w_0^2/\lambda$ est la distance de Rayleigh.

en déplaçant les réseau du compresseur : en procédant ainsi, on n’induit pas seulement une phase temporelle sur l’impulsion, mais on change également son profil temporel d’intensité, et par conséquent sa durée et son intensité pic. Puisque $\phi_n^G(t)$ dépend de ce profil d’intensité, $\phi_n^G(t)$ et $\phi_L(t)$ ne varient pas de façon indépendante, ce qui rend difficile l’exploitation *quantitative* d’une telle mesure. Après avoir analysé l’origine physique de cette phase, nous verrons à la fin de cette section une façon beaucoup plus simple de la mesurer.

2.4.2 Origine de la phase intrinsèque CWE : étude numérique

Origines possibles de la phase $\phi_n^G t$

Pour analyser ces effets de phase, il est utile de raisonner sur le train d’impulsions attosecondes associé au spectre harmonique. Tout écart à la périodicité dans ce train va aboutir à un élargissement spectral des harmoniques, et éventuellement à des phases spectrale et temporelle non-linéaires. Grâce aux travaux réalisés sur la génération d’harmoniques dans les gaz [122], on sait que les écarts à la périodicité induisant une phase non-nulle peuvent notamment correspondre aux effets suivants, associés à des termes d’ordre croissant dans un développement de Taylor de la phase par rapport à la fréquence :

- (i) Une variation de la phase relative envelope-porteuse (abrégiée CEP, acronyme du terme anglais Carrier-Envelop relative Phase) des impulsions attosecondes individuelles le long du train.
- (ii) Une variation de l’instant d’émission des impulsions attosecondes, par rapport à

un instant donné du cycle optique laser.

(iii) Une variation de la dérive de fréquence des impulsions attosecondes.

Deux principales questions se posent à présent pour le mécanisme CWE : Quel type d'écart à la périodicité est responsable de la phase ϕ_n^G mise en évidence expérimentalement ? Quel effet physique est responsable de cet écart ?

Simulations PIC : variation du temps d'émission

Afin de répondre à ces questions, nous avons effectué des simulations PIC détaillées du processus CWE [116]. Ces simulations montrent très clairement que l'effet dominant est la variation du temps d'émission des impulsions attosecondes CWE au cours de l'impulsion laser (Fig. 2.31). Cet effet se produit même dans les simulations réalisées en fixant la position des ions, ce qui empêche toute expansion du plasma au cours de l'interaction : c'est donc la variation de l'intensité laser qui est responsable de changement de temps d'émission. Il s'agit donc d'une phase intrinsèque.

Lorsque l'on autorise les ions à se déplacer dans la simulation, c'est essentiellement l'efficacité de génération qui varie dans le temps, puisqu'elle est influencée par la longueur de gradient. Ceci va affecter la durée d'émission, et donc la largeur spectrale, mais n'introduit pas de terme de phase supplémentaire.

Nous avons réalisé le même étude pour les harmoniques relativistes. Nous avons ainsi observé dans les simulations, que ni la CEP, ni le temps d'émission (Fig. 2.31), ni le chirp des impulsions attosecondes induites par effet Doppler ne varie significativement le long du train. La phase ϕ_n^G pour ce mécanisme est donc négligeable par rapport à celle du CWE, ce qui explique directement les différences de largeur spectrale et de divergence observées expérimentalement entre les harmoniques associées à ces deux mécanismes.

Origine physique de la variation du temps d'émission

La question se pose maintenant de savoir à quelle étape du processus CWE se produit cette variation du temps d'émission avec l'intensité laser. Il y a a priori deux possibilités : ou bien c'est le temps de retour des électrons dans le plasma qui dépend de l'intensité, ou bien c'est le délai entre l'excitation des oscillations plasmas (simultanée au passage des électrons) et l'émission de l'impulsion attoseconde. En étudiant au moyen de simulations PIC les trajectoires du sous-ensemble des électrons de Brunel qui forment les paquets de charge responsables de l'excitation des oscillations plasmas (Fig. 2.32(b) et (e)), nous avons montré que c'est la variation du temps de retour de ces électrons qui explique entièrement la dépendance en intensité laser du temps d'émission des impulsions attosecondes.

Nous avons initialement supposé que ce délai variable était entièrement accumulé lors du trajet des électrons dans la partie surdense du plasma, c'est-à-dire entre une densité de $\approx n_c$ et les densités de plus de $100n_c$ où sont émises les harmoniques d'ordre > 10 . En effet, dans cette zone, les électrons ne sentent pratiquement plus l'effet du laser, qui est écranté par le plasma. Leur temps de parcours dépend donc de la vitesse qu'ils ont acquise avant d'y pénétrer, sous l'effet du champ laser, et cette vitesse croît a priori avec l'intensité laser. Qualitativement, ce temps de trajet va donc avoir tendance à

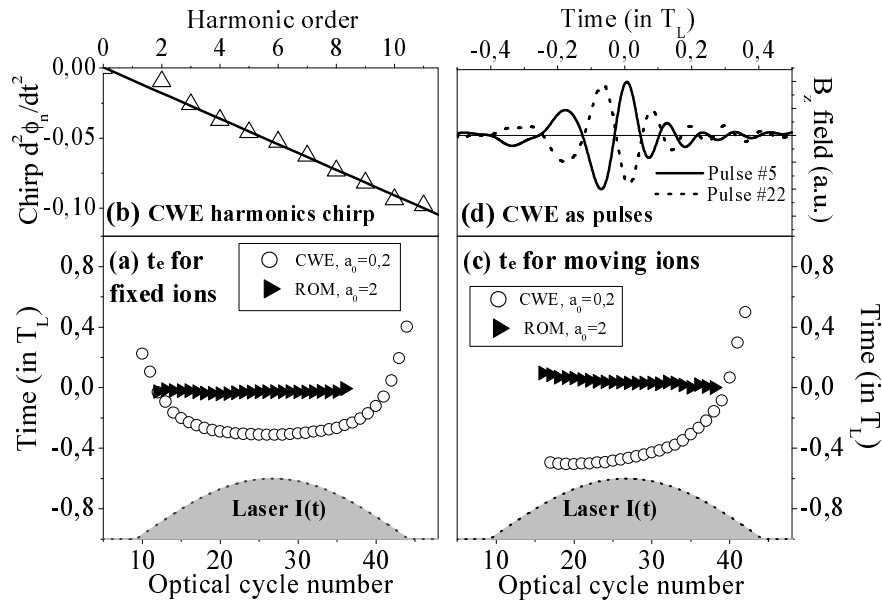


FIG. 2.31 – Temps d'émission des impulsions attosecondes CWE et Doppler (superposition des harmoniques 4 to 10 pour le CWE, et 11 à 35 pour l'effet Doppler), pour un plasma de densité maximale $110n_e$, soumis à une impulsion laser de 35 cycles optiques, à 45° d'incidence. En (a), les ions sont maintenus immobiles, et la longueur caractéristique du gradient exponentiel imposé est de $\lambda/100$ (resp. $\lambda/30$) pour le CWE (resp. Doppler). (b) montre le paramètre de dérive de fréquence des harmoniques CWE individuelles obtenu dans ce cas. Sa variation linéaire avec la fréquence montre que l'effet de variation de temps d'émission montré en (a) domine totalement la phase de des harmoniques. En (c), le mouvement des ions est permis, et le gradient de densité initiale est infiniment raide. (d) Champ magnétique de deux impulsions attosecondes CWE dans le train obtenues dans ce cas. Ceci montre qu'avec les ions mobiles, une variation de CEP de $\approx \pi$ se produit entre les deux extrémités du train, ce qui reste très faible.

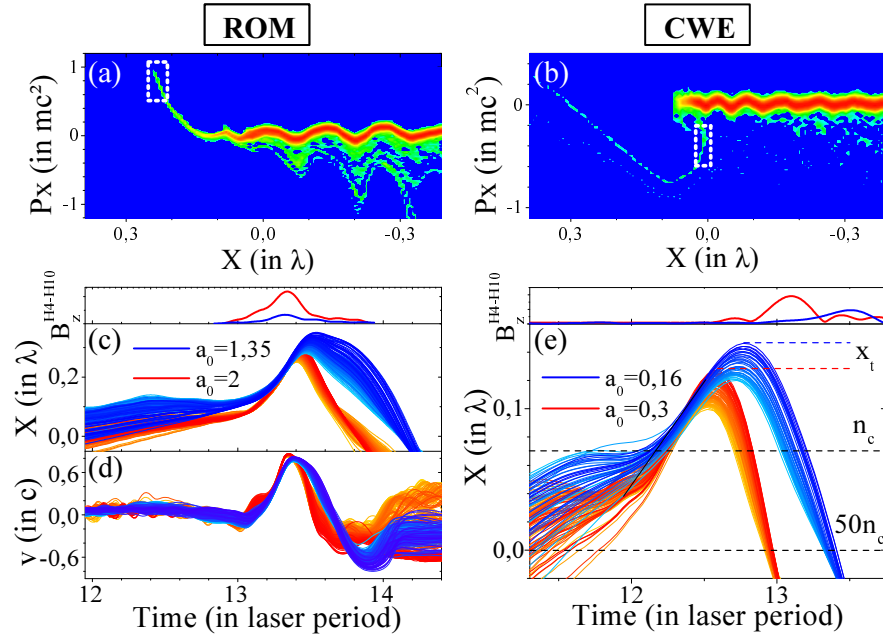


FIG. 2.32 – Evolution avec l'intensité laser des trajectoires des électrons responsables de la génération d'harmoniques CWE et Doppler. (a)-(b) Densité d'électrons du plasma dans l'espace des phases $x - p_x$ à deux instants différents, correspondant respectivement à un effet Doppler vers le bleu induit par les électrons de Brunel allant vers le vide (a), et à la pénétration du gradient de densité par les électrons de Brunel revenant vers le plasmas (b). Sur les graphes du bas, les électrons occupant les zones incluses dans les rectangles hachurés blancs ont été sélectionnés. (c) Trajectoires et (d) vitesse v (le long de la direction spéculaire) des électrons de Brunel responsables des harmoniques relativistes. (e) Trajectoires des électrons de Brunel qui excitent les oscillations plasmas dans le mécanisme CWE. Dans les deux cas, deux ensembles de trajectoires sont présentées, correspondant à deux intensités lasers. Les panneaux du haut sur ces graphes montrent l'amplitude du champ magnétique des impulsions attosecondes correspondantes.

retarder l'émission des impulsions attosecondes à plus basse intensité, ce qui correspond effectivement au résultat observé dans les simulations (Fig.2.31).

Cependant, d'un point de vue quantitatif, une analyse détaillée des trajectoires de la figure 2.32(e) montre que la variation de ce temps de trajet ne rend compte que d'environ la moitié de la variation du temps d'émission. L'autre moitié est accumulée alors que les électrons subissent l'effet du laser. Il semble difficile de trouver une interprétation simple à cet effet : en l'état actuel de notre compréhension du processus, on peut simplement dire que le retard accumulé dépend de l'ensemble de la dynamique dans le champ laser, et donc de l'intensité laser.

Nous avons effectué une étude similaire pour l'émission par effet Doppler (Fig. 2.32(a-c-e) et (e)), qui montre que les électrons allant vers le vide atteignent toujours leur vitesse maximale au même instant du cycle optique du laser, indépendamment de l'intensité laser (en régime modérément relativiste). C'est pourquoi le temps d'émission des impulsions attosecondes relativistes ne dépend pas de l'intensité laser.

2.4.3 Mesure de la dépendance en intensité laser du temps d'émission

Comment mesurer cette dépendance en intensité de la phase des harmoniques CWE ? L'idéal serait clairement de mesurer une figure d'interférence spatiale entre deux sources d'harmoniques CWE, et d'étudier l'évolution de la position des franges d'interférence avec l'intensité de l'une des deux sources. Cependant, obtenir deux sources indépendantes, dont l'une puisse être ajustée en intensité, est relativement difficile avec des lasers multi-TW tels que ceux utilisés pour ces expériences. De plus, un problème majeur de cette technique est qu'elle requiert d'excellentes stabilités de pointé du laser et de délai entre les deux sources, sans quoi le déplacement des franges induit par les variations d'intensité est totalement masqué par les fluctuations tir-à-tir de leur position. Cette difficulté a longtemps rendu impossible l'exploitation de *tout* le potentiel de cette technique pour l'étude de la génération d'harmoniques dans les gaz [123]. Ce problème a récemment été résolu par l'emploi de montages entièrement basés sur des optiques monolithiques utilisées en transmission [124].

Pour contourner ces difficultés, nous avons utilisé une méthode originale, qui emploie non pas deux, mais trois sources harmoniques [118]. Ces trois sources sont très facilement obtenues en plaçant un réseau en transmission -en l'occurrence, un simple "peigne" en verre dépoli, de périodicité 1 cm- dans le faisceau laser, avant focalisation. La profil d'intensité obtenue au foyer est la transformée de Fourier de ce peigne. En choisissant bien les caractéristiques de ce peigne -périodicité et ouverture entre les dents- on peut obtenir trois tâches focales dominantes. La tâche centrale est la plus intense, entourée de deux satellites d'intensités égales.

Chaque source génère un faisceau harmonique, et ces trois faisceaux se recouvrent spatialement en divergeant depuis la cible. En mesurant le profil spatial d'intensité des harmoniques ainsi obtenu, on observe des franges d'interférences. Ces franges contiennent nécessairement l'information sur la phase relative de ces trois sources. Le point crucial est que, du fait de la symétrie par rapport à la tache centrale, cette différence de phase est encodée dans le contraste des franges, et non dans leur position.

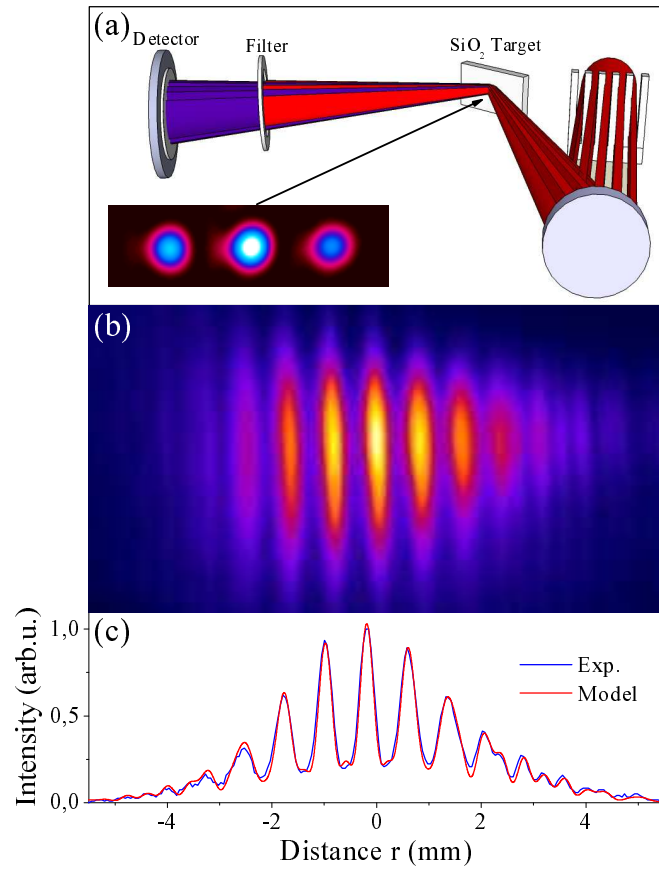


FIG. 2.33 – Interférences à trois sources harmoniques. (a) Schéma expérimental simplifié (les lames de silice traitées anti-reflet ont été omises). (b) Image de la distribution d'intensité au foyer. (c) Figures d'interférences obtenues au niveau des galettes à 38cm de la source pour une superposition des harmoniques 8 à 10 (filtre d'indium). Le faisceau laser est ouvert à $f/17$. (d) Profils des franges. La courbe expérimentale a été extraite de (c), la courbe théorique a été obtenue pour $\Delta\Phi_n = 0.23n \text{ rad}$.

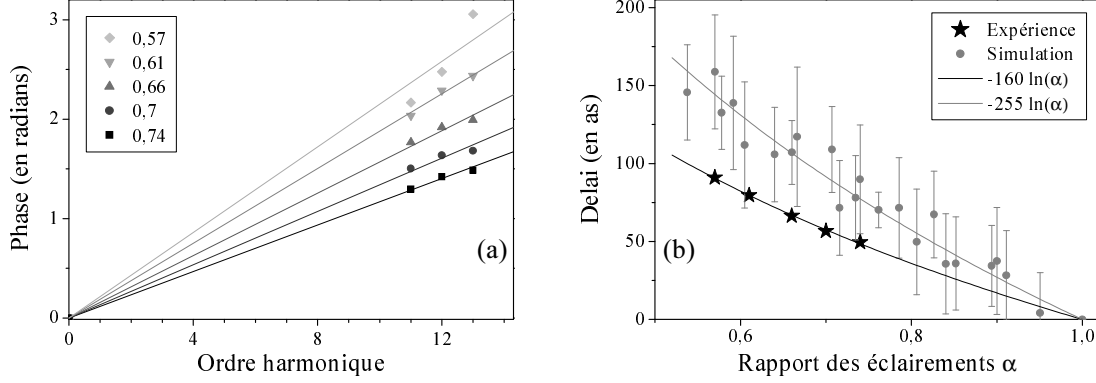


FIG. 2.34 – Mesure expérimentale de la phase harmonique. (a) Variation du déphasage $\Delta\Phi_n$ avec l'ordre harmonique pour 5 valeurs du rapport d'intensité α entre les sources centrales et latérales. Chaque point correspond à une moyenne sur 5 tirs. L'incertitude est d'environ 10%. (b) Délai entre les impulsions attosecondes générées sur la tache centrale et les taches latérales, en fonction de α . Ces résultats sont comparés avec les délais calculés à partir de simulations particulières effectuées pour des conditions d'éclairements comparables. Dans ce cas, les barres d'erreurs sont dues aux fluctuations du délai durant les simulations. Les deux courbes de tendance sont de la forme $A'\ln(\alpha)$ avec dans le cas des points expérimentaux : $A' = -160\text{as} = -(0.37/2\pi) \times 2.66\text{fs}$.

Même si cela rend l'analyse des données beaucoup plus délicate, on élimine ainsi le problème des fluctuations de pointé du laser, puisque la position des franges n'a plus aucune importance.

C'est ainsi que nous avons pu mesurer la dépendance en intensité de la phase. En variant l'ouverture entre les dents du peigne, on peut faire varier l'intensité relative des trois tâches, et ainsi mesurer cette variation de phase pour différents rapport d'intensités. De plus, en effectuant une analyse de Fourier de l'interférogramme, on peut extraire cette phase pour chaque harmonique comprise dans le faisceau. On obtient donc finalement ϕ_n^G en fonction de n et I (Fig. 2.34(a)).

Soulignons que l'idée initiale de cette expérience était simplement de prouver qu'il était possible de générer plusieurs sources harmoniques sur miroir plasma qui soient mutuellement cohérente. C'est en grande partie grâce à la perspicacité, à l'ingéniosité et à la persévérance de Cédric Thaury que nous avons finalement réussi à extraire beaucoup plus d'information de ces mesures.

Nous avons obtenu une phase ϕ_n^G mesurée par cette technique qui varie linéairement avec l'ordre harmonique n . Or une phase spectrale linéaire en fréquence correspond dans le domaine temporel à un délai : cette mesure confirme donc que c'est essentiellement le temps d'émission des impulsions attosecondes CWE qui varie lorsque l'intensité laser varie. Grâce aux mesures réalisées à différentes intensités, nous avons pu déterminer la variation de ce temps d'émission avec l'intensité laser (Fig. 2.34 (b)). L'accord entre ces résultats expérimentaux et les résultats des codes PIC est satisfaisant. Comme nous l'avons vu, ces simulations montrent également que cette variation du temps d'émission provient directement du temps de retour des électrons de Brunel : cette expérience est à l'heure actuelle la meilleure preuve expérimentale dont nous disposons du rôle joué

par les électrons de Brunel dans le mécanisme CWE.

2.5 Conclusions et perspectives

Mécanismes de base de la génération d'harmoniques

J'espère avoir montré tout au long de ce chapitre que les mécanismes de base de génération d'harmoniques par réflexion sur miroir plasma sont aujourd'hui relativement bien compris. Des études théoriques plus approfondies de ces mécanismes restent cependant à réaliser. Certains aspects du mécanisme CWE, et notamment l'étape d'émission de lumière par les oscillations plasmas, nécessiteraient des études plus formelles et rigoureuses. Si possible, des théories analytiques de ces processus seraient évidemment très utiles, par exemple pour calculer la durée des impulsions attosecondes CWE, ou l'étendue du spectre harmonique en régime relativiste. Les tentatives récentes dans cette direction, pour le régime ultra-relativiste [101], restent peu satisfaisantes.

Etudes expérimentales à court terme

Au niveau expérimental, il est probable que les prochaines expériences se concentreront sur l'étude des propriétés spatiales des harmoniques, qui sont en principe relativement simples à mesurer, mais sont encore mal connues. L'expérience la plus récente sur le laser ASTRA (Fig. 2.35) a confirmé les différences de divergence attendues entre harmoniques CWE et Doppler. Elle a également montré toutes les harmoniques relativistes (ordres 20 à ≈ 40) avaient la même divergence [115]. L'équipe de M. Zepf a interprété cela comme provenant de la courbure de la surface du plasma, induite par l'effet pondéromoteur du champ laser sur le plasma. L'idée est que cet effet résulte en la formation d'un miroir sphérique, qui impose une divergence commune à toutes les harmoniques (ce qui suppose implicitement que ces harmoniques ont toute la même taille de source). Cette interprétation reste à tester au moyen de simulations PIC 2D. J'effectue actuellement cette étude numérique détaillée sur ces aspects avec Arnaud Malvache, étudiant en thèse dans le groupe de Rodrigo Lopez-Martens (LOA). Expérimentalement, il sera intéressant de voir si cet effet domine systématiquement les propriétés spatiales des harmoniques relativistes, ou si cela dépend finement des conditions d'interaction.

Etudes expérimentales à moyen terme

A moyen terme, je pense que les deux principaux défis à relever dans l'étude expérimentale de la génération d'harmoniques sur miroir plasma seront les suivants.

Le premier est de réussir à générer des ordres harmoniques très élevés avec des impulsions ultrabréves (quelques dizaines de fs ou moins). Jusqu'à présent, l'ordre maximal observé avec de telles impulsions est d'environ 40 [115]. En revanche, avec les impulsions de 500 fs du laser VULCAN, des énergies de photon harmonique de plusieurs keV ont été rapportées [102], semble-t-il sous forme de faisceaux relativement bien collimatés [103]. Au delà de l'intérêt fondamental de ces processus optiques non-linéaires extrêmes, obtenir de tels faisceaux avec des impulsions plus courtes et des lasers plus compacts, aux taux de répétition plus élevés que VULCAN, ouvrirait des perspectives

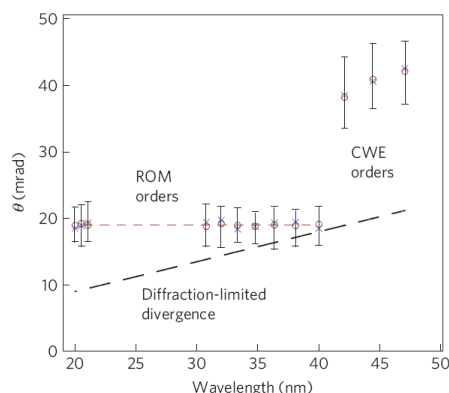


FIG. 2.35 – Distribution angulaire des harmoniques émises par un miroir plasma soumis au laser ASTRA. Les harmoniques relativistes sont indiquées par l'acronyme ROM (Relativistic Oscillating Mirror). Remarquer que les ordres 20 et 40 ont quasiment la même divergence. La durée d'impulsion est de 50 fs, et l'intensité pic d'environ $2 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$.

d'application très intéressantes. Pour arriver à ce but, deux pistes principales semblent se dégager : augmenter au maximum l'intensité laser sur cible, ou chercher à optimiser l'interaction en jouant sur les paramètres de la cible (densité de plasma et longueur de gradient notamment).

Le deuxième défi sera d'étudier les propriétés temporelles de ces harmoniques, jusqu'à l'échelle attoseconde. En principe, les méthodes de mesure attoseconde développées pour les harmoniques générées dans les gaz -et notamment FROG CRAB- s'appliquent de la même façon à celles générées sur miroir plasma. L'implémentation de ces méthodes avec les miroirs plasmas s'avère cependant très difficile, du fait de l'utilisation de lasers beaucoup moins flexibles, du taux de répétition effectif plus faible (nécessité de rafraîchir la cible), et de la divergence plus forte de ce type de source par rapport à celles générées dans les gaz.

Une première mise en évidence expérimentale d'impulsions attosecondes générées par le mécanisme CWE a cependant été obtenue récemment au MPQ à Garching [125, 126] (Fig. 2.36). La mesure a consisté à mesurer la fonction d'autocorrélation non-linéaire d'un train attoseconde CWE, en utilisant comme signal non-linéaire les ions créés par ionisation à deux photons d'atomes d'Hélium par les harmoniques. Il s'agit de la transposition directe d'une technique déjà démontrée auparavant dans les gaz (cf. conclusion du chapitre 1). Notre équipe a simultanément essayé de mettre en oeuvre cette technique avec le laser UHI10, indépendamment du MPQ. Nous avons cependant pu y consacrer beaucoup moins de ressources (temps de faisceau et moyens humains), et, contrairement au MPQ [66], nous ne possédions aucune expertise préalable sur cette technique : nous ne sommes ainsi jamais parvenus à mettre clairement en évidence un signal d'ions non-linéaire, en encore moins à mesurer une autocorrélation.

Cette expérience est importante, car elle constitue un premier pas vers une source attoseconde de deuxième génération, basée sur les plasmas [126]. Cependant, comme souligné en fin de chapitre 1, le potentiel de cette technique de mesure est extrêmement

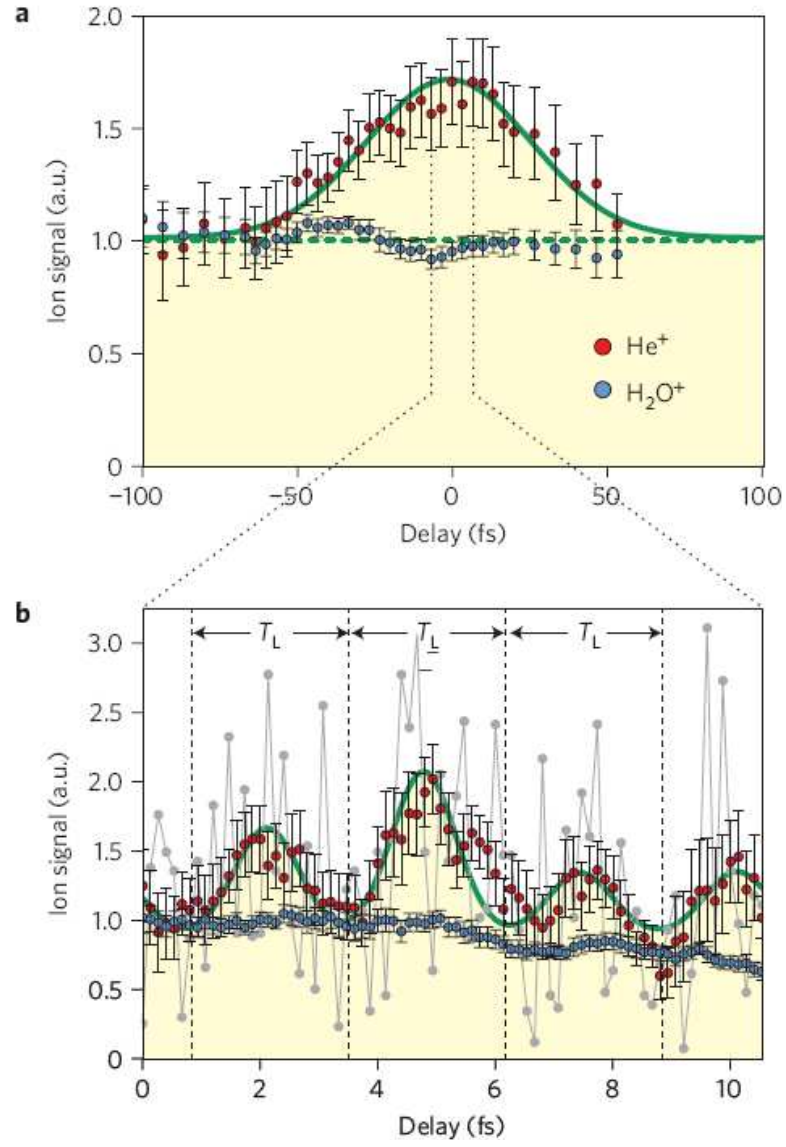


FIG. 2.36 – Mesure d'un train d'impulsions attosecondes CWE, correspondant à la superposition des harmoniques 8 à 14, par autocorrélation non-linéaire. En (a), un balayage grossier en délai sur l'ensemble de la durée de l'impulsion laser (pas de temps de 3.3 fs). En (b), un balayage fin près du zéro temporel, avec un pas en délai de 133 as.

limité, particulièrement avec des champs aussi complexes que des trains d'impulsions attosecondes. De plus, elle ne peut être appliquée telle quelle à des harmoniques d'ordre supérieur à 15 (pour un laser à 800 nm) : au-delà de cette valeur, les atomes d'Hélium peuvent être ionisés par absorption à un photon, et ce processus domine alors totalement le signal d'ions mesuré.

Effectuer des mesures plus élaborées, qui permettent à terme de reconstruire le champ électrique des impulsions attosecondes émises par les miroirs plasma, comme cela a été fait pour les gaz, constitue un nouveau défi passionnant pour la métrologie attoseconde. Deux options sont possibles. La première consiste à porter ses efforts sur des développements techniques (par exemple développement de cibles à haut taux de répétition et longue durée de vie), pour implémenter des méthodes déjà démontrées comme FROG CRAB. L'autre option, peut-être plus ambitieuse, consiste à chercher de nouvelles méthodes de mesure attoseconde, plus adaptées à ce type de source.

Ainsi, je pense qu'une approche prometteuse consiste à tirer profit du fait que l'on dispose déjà aujourd'hui d'une source de lumière attoseconde, relativement bien caractérisée, fournie par la génération d'harmoniques dans les gaz. Cette source de référence pourrait permettre de déterminer la phase spectrale des harmoniques générées sur un miroir plasma *en un seul tir laser*, en réalisant une mesure d'interférence entre ces deux sources. D'un point de vue expérimental, le plus réaliste serait de mesurer des interférences spatiales, résolues spectralement : une telle technique, appelée SEA TADPOLE a déjà été largement utilisée pour les impulsions femtosecondes visibles [127, 128], ou plus récemment pour étudier la génération d'harmoniques dans les molécules [124]. La difficulté dans le cas d'une expérience d'interférence harmoniques solides / harmoniques gaz est bien sûr d'obtenir une visibilité suffisante des franges d'interférence, ce qui suppose une cohérence mutuelle des sources suffisamment grande. Cette expérience semble cependant réalisable, et est actuellement en préparation dans notre laboratoire.

Conclusions et perspectives générales

Les lasers femtosecondes sont aujourd'hui capables d'atteindre des intensités lumineuses considérables, dépassant 10^{20} W/cm^2 . Les électrons d'une cible exposée à un champ électromagnétique d'une telle intensité acquièrent, en quelques femtosecondes seulement, des vitesses fortement relativistes. Grâce aux progrès réalisés sur le contraste temporel de ces lasers -en particulier au moyen des miroirs plasmas présentés dans ce manuscrit- il est aujourd'hui possible de mettre en oeuvre cette interaction dite ultra-relativiste dans des conditions bien contrôlées.

Manipuler la matière avec les lasers intenses : vers des accélérateurs ultra-compacts

Jusqu'à présent, ces lasers ont essentiellement été utilisés pour accélérer des particules -ions ou électrons- à des énergies très élevées sur de très courtes distances, dans la perspective de mettre au point des accélérateurs de particules extrêmement compacts. Dans ces expériences, on utilise donc l'impulsion laser essentiellement comme une source d'énergie concentrée, afin de manipuler la matière.

Ces dernières années, des progrès spectaculaires ont été réalisés dans ce domaine, aussi bien en termes de compréhension fondamentale des mécanismes d'interaction, que des performances de ces sources de particules. Ainsi, des faisceaux d'électrons mono-énergétiques d'excellente qualité spatiale ont été obtenus, avec des énergies approchant du GeV sur une distance de seulement quelques centimètres [129]. En ce qui concerne l'accélération de protons ou d'ions, de nouveaux régimes d'accélération très prometteurs ont été identifiés théoriquement, tel que le régime de "Radiation Pressure Acceleration" [130], qui devraient devenir accessibles expérimentalement dans un futur proche grâce aux progrès des sources lasers, et permettre d'obtenir des faisceaux de protons mono-énergétiques de plus du GeV [131].

Manipuler les lasers intenses avec la matière : vers l'optique des plasmas à ultra-haute intensité ?

En comparaison, très peu de travaux ont été effectués pour réaliser l'opération inverse, c'est-à-dire pour manipuler, à l'aide de la matière, les champs électromagnétiques cohérents ultraintenses fournis par ces lasers - autrement dit, pour développer *l'optique*

à *ultra-haute intensité*.

L'optique hautement non-linéaire ($I < 10^{12} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$) et l'optique non-perturbative ($I < 10^{15} \text{ W/cm}^2$) ont été largement développées depuis la fin des années 80, et ont respectivement abouti à l'obtention d'impulsions visibles énergétiques de quelques cycles optiques stabilisées en phase, et à l'obtention de sources attosecondes de lumière. Mais, jusqu'à récemment, le domaine de l'optique ne s'était pas étendu au delà de quelques 10^{15} W/cm^2 - bien en-deçà des intensités lasers aujourd'hui disponibles.

Ceci est probablement dû au fait que les champs lasers ultraintenses ionisent quasiment instantanément tout type de cible, créant ainsi inévitablement un plasma. Or un plasma est généralement considéré comme un milieu instable et difficile à contrôler, et donc *a priori* inadapté à l'optique cohérente. Les résultats présentés dans ce manuscrit sur les miroirs plasmas démontrent au contraire que ces problèmes peuvent être évités en utilisant des lasers ultrabrefs, ultraintenses et à haut contraste : dans ce régime, la plupart des instabilités plasmas n'ont plus le temps de se développer. Il devient ainsi possible de modifier le champ électromagnétique du laser de façon considérable, tout en conservant un très haut degré de cohérence. Les miroirs plasmas, utilisés soit comme filtre temporel, soit pour générer des harmoniques et des impulsions attosecondes, constituent ainsi le premier exemple d'optique des plasmas à ultra-haute intensité.

Peut-on aller plus loin et développer d'autres éléments optiques basés sur les plasmas, et capables de manipuler les champs électromagnétiques ultraintenses ? C'est ce projet scientifique, baptisé PLASMOPT, que j'ai présenté en 2008 pour obtenir une "Starting Grant" du nouveau Conseil Européen de la Recherche. Ce projet a été sélectionné par le comité d'évaluation, mais avec un classement qui le place seulement en liste d'attente, pour un éventuel financement à hauteur de 1.2 M€ sur une durée de 5 ans.

Motivations du projet PLASMOPT

Ce projet présente un intérêt à la fois fondamental et appliqué. D'un point de vue fondamental, les lois qui régissent ce nouveau régime de l'optique restent à établir, en particulier dans le régime de l'optique dite relativiste ($I > 10^{18} \text{ W/cm}^2$). Les effets physiques élémentaires mis en jeu sont néanmoins déjà relativement bien identifiés, et sont les suivants :

- (i) *L'excitation d'oscillations plasmas* : Dans les plasmas sous-denses, ces oscillations sont excitées par l'impulsion laser elle-même : en se propageant dans le plasma, elle expulse les électrons vers les zones de plus basse intensité, par l'effet dit pondéromoteur. Cela résulte en une perturbation de densité, qui conduit à une oscillation collective de charge dans le sillage de l'impulsion. Dans les plasmas surdenses, des oscillations du même type, à beaucoup plus haute fréquence, peuvent être excitées dans le sillage de paquets d'électrons injectés dans le plasma dense par le champ laser (cf. mécanisme CWE).
- (ii) *La dépendance en intensité laser de la constante diélectrique du plasma en régime relativiste* : la constante diélectrique effective d'un plasma dans un champ laser d'intensité relativiste est donnée par $\epsilon = 1 - \omega_p^2 / (\gamma \omega_L^2)$, où γ est le facteur de

Lorentz moyen des électrons dans le champ laser. Ce facteur provient de la saturation du courant de polarisation dans le plasma lorsque la vitesse des électrons approche c . Cela donne lieu à un indice de réfraction $n = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$ qui dépend de l'intensité laser, ce qui peut affecter fortement la propagation d'impulsions ultrabrèves ultraintenses dans les plasmas sous-denses.

- (iii) *L'effet Doppler induit par le plasma sur les ondes électromagnétiques* : à des intensités supérieures à 10^{18} W/cm^2 , l'interaction avec le laser peut engendrer des mouvements de distributions de charges à vitesse relativiste. La lumière diffusée de façon cohérente par de telles distributions subit un effet Doppler, qui peut potentiellement donner lieu à de très forts décalages en fréquence, ainsi qu'à une compression ou une dilatation temporelle.

Etudier l'optique à ultrahaute intensité, c'est chercher à comprendre, selon les conditions d'interaction, l'importance relative de ces différents effets, et la façon dont ils se combinent éventuellement, pour déterminer la dynamique complexe de la lumière dans le milieu.

D'un point de vue plus appliqué, l'idée est d'utiliser ce nouveau régime de l'optique pour obtenir de nouvelles sources de lumière, plus énergétiques (par exemple en développant des amplificateurs basés sur des plasmas sous-denses [132]), plus brèves (jusqu'à la gamme attoseconde [133]) et/ou dans de nouvelles gammes de longueurs d'onde (pouvant aller du terahertz [134] au rayons X [102, 133]). De ce point de vue, l'exploitation de l'effet Doppler résultant du mouvement relativiste du plasma induit par un laser ultraintense ouvre des perspectives particulièrement remarquables à moyen et long terme : par exemple, une source attoseconde de troisième génération pourrait être obtenue en générant, au moyen d'une impulsion laser de puissance extrêmement élevée ($I > 10^{20} - 10^{21} \text{ W/cm}^2$), un miroir relativiste non plus oscillant, mais en mouvement uniforme, qui serait ensuite utilisé pour comprimer par effet Doppler une seconde impulsion laser femtoseconde en impulsion attoseconde isolée et énergétique [135].

Brève description du projet PLASMOPT

Plus concrètement, deux types d'éléments optiques seront étudiés dans le cadre de ce projet. Il s'agira tout d'abord d'approfondir l'étude des miroirs plasmas -commencée il y a 5 ans dans notre groupe et dont les principaux résultats ont été présentés dans ce manuscrit- et d'exploiter ce type d'interaction pour développer une source attoseconde de deuxième génération. Pour cela, nous chercherons d'une part à explorer et à mieux comprendre le régime d'interaction ultra-relativiste, et ainsi à obtenir des harmoniques d'ordre très élevé, avec si possible des énergies de photon au delà du keV [102, 133]. D'autre part, nous tenterons d'effectuer des mesures précises de la structure temporelle du champ réfléchi par le miroir plasma à l'échelle attoseconde. Ce volet du projet se situe ainsi clairement à l'interface des deux sujets développés dans ce mémoire, la métrologie attoseconde et la physique des miroirs plasmas.

L'autre volet du projet porte sur la propagation des impulsions ultrabrèves et ultraintenses dans les plasmas sous-denses. Des études théoriques ont mis en avant la possibilité d'utiliser cette propagation pour comprimer temporellement les impulsions

lasers jusqu'à des durées de quelques cycles optiques seulement [136], avec des énergies de l'ordre du joule, soit 1 à 3 ordres de grandeur (selon la technologie utilisée) de plus que les impulsions aujourd'hui disponibles dans cette gamme de durée. De telles impulsions pourraient par exemple être focalisées sur un miroir plasma pour obtenir des impulsions attosecondes isolées au lieu de train d'impulsions, ou pour explorer de nouveaux régimes d'accélération d'électrons par sillage dans les plasmas sous-denses.

Pour mieux comprendre la physique de cette propagation, encore mal connue, il est indispensable d'étudier en détail les propriétés spatiales, spectrales et temporelles de l'impulsion après l'interaction. L'espace des paramètres [intensité laser, durée d'impulsion laser, densité du plasma] devra être exploré afin de mettre en évidence les différents régimes de propagation, et l'existence éventuelle d'attracteurs, ou au contraire de comportements chaotiques. Seules quelques études expérimentales de ce type, forcément non-exhaustives, ont été réalisées à ce jour dans ce régime [137, 138], et seulement une mesure temporelle à ma connaissance [137]. Cette dernière consistait en une auto-corrélation non-linéaire : comme nous l'avons vu dans le cadre de la métrologie attoseconde, une telle mesure est un diagnostic peu fiable pour des impulsions à la forme potentiellement complexe. Dans le projet PLASMOPT, les techniques plus élaborées et fiables aujourd'hui disponibles, telles que SPIDER ou FROG, seront mises en oeuvre.

Un avantage des plasmas sous-denses générés sur cible gazeuse, comparés aux plasmas sur-denses créés sur cible solide, est de permettre *a priori* une plus grande versatilité de configuration d'interaction. En particulier, différents travaux ont montré ces dernières années qu'il est possible d'utiliser un faisceau laser secondaire, pour préparer des plasmas structurés en densité, avant l'arrivée de l'impulsion ultraintense (cf. par exemple [139, 140]). On peut ainsi notamment obtenir des plasmas présentant de très fortes modulations longitudinales de densité, ou bien des plasmas de longueur contrôlée, avec des bords très raides. Ces milieux structurés ouvrent clairement des perspectives fondamentales très intéressantes pour l'optique des plasmas, par exemple pour la création de réseau de Bragg à base de plasmas. Cette possibilité de contrôler de façon fine la structure du plasma est également importante pour les applications de l'optique des plasmas : par exemple, des études théoriques [136] suggèrent qu'une modulation longitudinale d'un plasma sous-dense permet d'éviter les instabilités de filamentation qui peuvent perturber la propagation non-linéaire. Nous chercherons donc à créer et à exploiter de tels plasmas structurés par laser dans le cadre du projet PLASMOPT.

Soulignons enfin que ces phénomènes de propagation non-linéaires dans les plasmas sous-denses sont également essentiels dans le contexte de l'accélération de particules : en effet, on pense aujourd'hui que l'autofocalisation et l'auto-compression temporelle jouent un rôle central dans l'accélération d'électrons par sillage [141]. De même, l'utilisation de plasma structurés présente un intérêt pour l'accélération d'électrons, par exemple pour améliorer et contrôler l'injection, ou pour augmenter le rayonnement Bétatron de ces électrons [142]. Ces études auront donc également des retombées sur ce domaine de recherche très actif et compétitif.

Un peu d'extrapolation...

L'optique des plasmas à ultrahaute intensité est aujourd'hui rendue possible par le

développement des laser ultra-intenses. A terme, on peut espérer que ce thème de recherche émergent pourra à son tour contribuer au progrès des lasers ultra-intenses. Ainsi, on peut se laisser aller à imaginer ce que pourrait être, dans un futur sans doute pas si proche, un laser ultraintense ultrabref basés sur les plasmas. Ce laser comporterait tout d'abord une série d'amplificateurs à plasmas. Son contraste temporel serait ensuite amélioré au moyen d'un double miroir plasma, et la durée d'impulsion réduite à quelques cycles optiques par propagation non-linéaire dans un plasma sous-dense. L'impulsion ainsi obtenue pourrait enfin être utilisée pour générer des impulsions attosecondes isolées dans le domaine du keV , par effet Doppler sur un miroir plasma.

Annexe A

Liste de publications

Liste des publications de F.Quéré

Indice h=16

Publications dans des revues internationales avec comité de lecture *(21 publications)*

- **Coherent dynamics of plasma mirrors**

C. Thaury, H.George, F. Quéré, R.A. Loch, J-P. Geindre, P. Monot, Ph. Martin,
Nature Physics **4**, 631 (2008)

2 citations

- **Phase Properties of Laser High-Order Harmonics Generated on Plasma Mirrors**

F. Quéré, C. Thaury, J.-P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot, Ph. Martin
Phys. Rev. Lett. **100**, 095004 (2008)

10 citations

- **Comment on “Transition to the relativistic regime in high order harmonic generation”**

F. Quéré, C. Thaury, J-P. Geindre, Ph. Martin,
Phys. Rev. Lett. **100**, 089401 (2008)

1 citation

- **Plasma mirrors for ultrahigh-intensity Optics**

C. Thaury, F. Quéré, J-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. d'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, Ph. Martin,
Nature Physics **3**, 424 - 429 (2007)

42 citations

- **Double plasma-mirror for ultra-high temporal contrast ultra-intense laser pulses**

A. Lévy, T. Ceccotti, P. D'Oliveira, F. Réau, M. Perdrix, F. Quéré, P. Monot, M. Bougeard, H. Lagadec, P. Martin, J-P. Geindre, P. Audebert
Optics Letters, **32**, 3 (2007)

15 citations

- **Coherent Wake Emission of High-Order Harmonics from Overdense Plasmas**

F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, Ph. Martin, J.-P. Geindre and P. Audebert.
Physical Review Letters **96**, 125004 (2006)

32 citations

- **New target for high-intensity laser-matter interaction : gravitational flow of micrometer-sized powders**

M.Servol, F.Quéré, M.Bougeard, P. Monot, Ph.Martin, A. Ya Faenov, T.A. Pikuz, P. Audebert, M. Francucci, P.Petrocelli
Review of Scientific Instruments **76**, 083105 (2005)

- **Temporal characterization of attosecond xuv fields**

F. Quéré, Y. Mairesse, J.Itatani
Journal of Modern Optics **52**, 339 (2005)

37 citations

- **Frequency-Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts**

Y. Mairesse, F. Quéré,
Physical review A **71**, 011401(R) (2005)

50 citations

- **High-Order Harmonics Generation by non-linear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma**

P. Monot, G. Doumy, S. Dobosz, M. Perdrix, P. D'Oliveira, F. Quéré, F. Réau, Ph. Martin, P. Audebert, J.C. Gauthier, J.P. Geindre
Optics Letters **29** (8) 893-5 (2004)

28 citations

- **Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultra-intense laser pulses**

G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, Ph. Martin, P. Audebert, J.C. Gauthier, J.-P. Geindre, T. Wittmann
Physical Review E **69**(2), 26402 (2004)

62 citations

- **X-ray Spectroscopic Observations of a Superdense Plasma in Nanoparticles Irradiated by Superintense Femtosecond Laser Radiation**

A. Ya. Faenov, T. A. Pikuz, I. Yu. Skobelev, A. I. Magunov, V. P. Efremov, M. Servol, F. Quéré, M. Bougeard, P. Monot, Ph. Martin, M. Francucci, G. Petrocelli, and P. Audebert

JETP Letters **80**, 730 (2004)

5 citations

• **Dynamics of Femtosecond Laser Interactions with Dielectrics**

S. S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, X. Mao, R. E. Russo, G. Petite, P. Martin.

Applied Physics A **79**, 1695-1709 (2004)

76 citations

• **Time-resolved double ionization with few cycle laser pulses**

F. Lëgaré, I. V. Litvinyuk, P. W. Dooley, F. Quéré, A. D. Bandrauk, D. M. Villeneuve,
and P. B. Corkum

Physical Review Letters **91**, 093002 (2003)

48 citations

• **Attosecond spectral shearing interferometry**

Quéré-F, Itatani-J, Yudin-G.L, Corkum-P.B

Physical Review Letters **90**, 073 902 (2003)

50 citations

• **Attosecond streak camera**

Itatani-J, Quéré-F, Yudin-G.L, Ivanov-M. Yu., Krausz-F., Corkum-P.B

Physical Review Letters **88**, 173 903, (2002)

137 citations

• **Time-resolved study of laser-induced breakdown in dielectrics**

Quéré-F, Guizard-S, Martin-Ph

Europhysics Letters, **56** (1) , pp. 138-144 (2002)

50 citations

• **Femtosecond laser ablation of transparent dielectrics: measurement and modelisation of crater profiles**

S.Guizard, A. Semerok, J. Gaudin, M. Hashida, Ph. Martin, F. Quéré

Applied Surface Science **186**, p.304 (2001)

26 citations

• **Hot-electron relaxation in quartz using high-order harmonics**

Quéré-F; Guizard-S; Martin-Ph; Petite-G; Merdji-H; Carré-B; Hergott-J-F, Le Déroff-L.

Physical Review B **61**, 9883-6 (2000)

31 citations

- **Comment on "Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical breakdown of dielectrics"**

Petite-G; Guizard-S; Martin-Ph; Quéré-F;
Physical Review Letters **85**, p.5182. (1999)

15 citations

- **Detection by NMR of a "local spin gap" in quenched CsC₆₀**

Brouet-V; Alloul-H; Quéré-F; Baumgartner-G; Forro-L
Physical Review Letters. **82**, no.10; 8; p.2131-4 (1999)

20 citations

Compte-rendus de conférences, avec ou sans comité de lecture **(27 publications)**

- **Attosecond and femtosecond metrology for plasma mirrors**

F.Quéré, H. George, Ph. Martin
Proc. SPIE **7359**, 73590E (2009)

- **High-order harmonic generation from plasma mirrors**

C. Thaury, F.Quéré, H. George, J-P, Geindre, P. Monot, Ph. Martin
European Physical Journal – Special Topics **175**, 43-48 (2009)

- **Enhanced ion acceleration with extremely thin foils**

R.A. Loch, A. Lévy, T. Ceccotti, F. Quéré, C. Thaury, H. George, F. Bijkerk, K.-J. Boller, Ph. Martin
European Physical Journal – Special Topics **175**, 133-138 (2009)

- **High-order harmonic generation using plasma mirrors**

F. Quéré, C. Thaury, H. George, JP. Geindre, E. Lefebvre, G. Bonnaud, P. Monot, Ph. Martin
Plasma Physics and Controlled Fusion, **50**, 124 007 (2008)

- **Basic mechanisms of high-order harmonic generation from plasma mirrors**

F.Quéré, C. Thaury, H. George, J-P, Geindre, P. Monot, Ph. Martin
Journal of Modern Optics **55**, 2711 (2008)

• **Study of femtosecond laser interaction with gold nanoparticles embedded in dielectrics**

P. Palyanov, F. Quéré, Ph. Martin, P. Grua, J. P. Morreeuw, and H. Bercegol
Proc. SPIE **5975**, 59750Q (2006)

• **Solvated electron at the light of femtosecond laser interaction**

P. Palyanov, F. Quéré, Ph. Martin, and S. Pommeret
Proc. SPIE **5975**, 59750P (2006)

• **Plasma diagnostics using high-order-harmonics generation**

Ph. Martin, G. Doumy, M. Servol, M. Bougeard, H. Stabile, S. Dobosz, P. Monot, F. Quéré, F. Réau, P. d'Oliveira, H. Lagadec, and T. Ceccotti, P. Audebert and J. P. Geindre, S. Hüller
Proc. SPIE **5975**, 597504 (2006)

• **Ultra-fast dynamics of the refractive index in laser-excited water**

P. Palyanov, F. Quéré, Ph. Martin, and S. Pommeret
Proc. SPIE **6160**, 61601P (2006)

• **High order harmonic generation by nonlinear reflection of a pedestal-free intense laser pulse on a plasma**

G. Doumy, S. Dobosz, , P. D'Oliveira, P. Monot, M. Perdrix, F. Quéré, F. Réau, Ph. Martin, P. Audebert, J.C. Gauthier, J.P. Geindre
Applied Physics B **78**, 901-4 (2004)

• **Methods for measuring attosecond x-ray pulses with a strong laser field**

Itatani-J, Quéré-F, Yudin-G.L, Corkum-P.B
Laser Physics **14** (3), 344-53 (2004)

• **Interaction of an intense laser field with a dielectric containing metallic nanoparticles**

F. Quéré, P. Grua, H. Bercegol, Ph. Martin, J.P. Morreeuw, J.L. Rullier
Applied Physics B **78**, 825-8 (2004)

• **Methods for measuring single attosecond x-ray pulses**

Itatani-J, Quéré-F, Yudin-G.L, Corkum-P.B
Proc. SPIE **5194**(1), 128-38 (2004)

- **Temporal characterization of attosecond pulses**

Quéré-F, Itatani-J, Yudin-G.L, Corkum-P.B

Ultrafast Optics IV, Edited by F.Krausz et al, Springer-Verlag (2004)

- **Interaction of an intense laser field with a dielectric containing metallic nanoparticles**

F. Quéré, P. Grua, H. Bercegol, Ph. Martin, J.P. Morreeuw, J.L. Rullier, E. Cottancin, M. Pellarin

Proc. SPIE **5273** (1) 170-6 (2004)

- **Utilization of a plasma mirror for the production of high-order harmonics from a planar surface**

Ph. Martin, P. Monot, G. Doumy, S. Dobosz, M. Perdrix, F. Réau, P. D'Oliveira, F. Quéré, P. Audebert, J.-P. Geindre, J.C. Gauthier, T. Wittmann

Proc. SPIE **5482** p.55 (2003)

- **Correlation between copper photoemission spectra and spectra of x-ray pulses produced by sub-picosecond laser-irradiated rare gas clusters**

P. Palyanov, J. Gaudin, F. Quéré, P. Meynadier, M. Perdrix, Ph. Martin

Proc. SPIE **5482** p.21 (2003)

- **Optical breakdown in dielectrics**

Ph. Martin, F. Quéré, S. Guizard

11th RCP proceedings, Tomsk Polytechnic University, (2001)

- **Use of femtosecond UV pulses for analysis of electron relaxation in SiO₂**

Quéré F., Guizard S., Martin P., Petite G., Carré B., Hergott J.-F., Merdji H., Salieres P.

Journal de Physique IV, **11**, 77-80 (2001)

Optical breakdown under strong ultrafast laser field

Quere F, Martin P, Guizard S

Laser Physics **11** (2), 231-235 (2001)

- **Ultra-fast electron relaxation measurements on SiO₂ using high order harmonic**

H. Merdji, S. Guizard, Ph. Martin, G. Petite, F. Quéré, B. Carré, J.F. Hergott, L. Le Déroff, P. Salières, O. Gobert, P. Meynadier, M. Perdrix.

Laser and Particle Beams.**18**, no.3; p.489-94 (2000)

• **Electron relaxation in SiO₂ under strong laser field using high-order harmonics generation**

Ph. Martin, F. Quéré, H. Merdji, S. Guizard, G. Petite, B. Carré, J.F. Hergott, L. Le Déroff, P. Salières.

Laser Physics **10**, p.270-277(2000)

• **Ultrafast carrier dynamics in laser-excited materials: subpicosecond optical studies**

Quéré-F; Guizard-S; Martin-Ph; Petite-G; Gobert-O; Meynadier-P; Perdrix-M

Applied-Physics-B. **B68**, no.3; p.459-63 (1999)

• **Subpicosecond studies of carrier dynamics in laser induced breakdown**

Quéré-F; Guizard-S; Martin-Ph; Petite-G; Gobert-O; Meynadier-P; Perdrix-M

Proc. SPIE **3578**; p.266-76. (1999)

• **Spin-singlets in metallic cubic quenched CsC₆₀**

V. Brouet, H. Alloul, F. Quéré, G. Baumgartner et L. Forro.

Electronic properties of novel materials - Progress in molecular Nanostructures, AIP Conference Proceedings **486**, p.42-6 (1999)

• **Local symmetry distortion evidenced by ¹³³Cs NMR in the rapidly quenched cubic CsC₆₀**

V. Brouet, H. Alloul, F. Quéré et L. Forro,

Electronic properties of novel materials - Progress in molecular Nanostructures, AIP Conference Proceedings **442**, p.310 (1998)

• **Momentum density in K₄C₆₀ and C₆₀**

Marangolo-M; Quéré-F; Bellin-C; Loupias-G; Moscovici-J; Rabii-S; Erwin-S; Herold-C; Mareche-JF; Lagrange-P

Journal-of-the-Physics-and-Chemistry-of-Solids **58** (11) p.1877- 9 (1997)

Article de vulgarisation

• **Ultrafast science : Attosecond plasma optics** (*News and Views paper*)

F. Quéré

Nature Physics **5**, 93 (2009)

Brevet

- « **Procédé et dispositif de génération de rayonnement ou de particules par interaction entre un faisceau laser et une cible** »

F. Quéré, M. Servol, M. Bougeard

Brevet n°04 09167 déposé en août 2004

Exposés invités en conférences

- “**SPIE Europe Optics + Optoelectronics**”, 20 - 23 April 2009, Prague, République Tchèque

Titre : *Attosecond and femtosecond metrology for plasma mirrors*

- “**Conference on Lasers and Electro Optics and International Quantum Electronics Conference**”, 4 au 9 mai 2008, San Jose, USA.

Titre: *High Order Harmonic Generation in High Intensity Laser-Solid Interactions*

- « **European Physical Society Plasma Physics Conference** », 9 au 13 juin 2008, Heraklion, Grèce

Titre : *Basic mechanisms of high-order harmonic generation on plasma mirrors*

- **Workshop « High Temporal and Spectral Resolution at Short Wavelengths »**, (30 novembre et 1^{er} décembre 2007, Heraklion, Grèce)

Titre : *Phase properties of High-order harmonics from plasma mirrors*

- **Conférence internationale « Ultra-intense Laser Interaction Sciences » (ULIS2007)**, (1 au 5 octobre 2007, Bordeaux, France)

Titre : *High-order harmonic generation from plasma mirrors*

- **Conférence internationale “Attosecond Physics”, 391. WE-Heraeus-Seminar** (1 au 5 août 2007, Dresde, Allemagne).

Titre : *High-order harmonic generation from plasma mirrors*

- **Workshop “New and emerging sources of intense beams of particles and short-wavelength radiation”**, (11 au 13 juin 2007, Lund, Suède).

Titre : *High-order harmonics*

- **15th International Laser Physics Workshop (LPHYS - 2006)**, (24 au 28 juillet 2006, Lausanne, Suisse)

Titre : *High-order harmonics generation from overdense plasmas*

- **Congrès annuel de la société française de Physique, section Plasmas** (Pont-à-Mousson, 2-5 mai 2006)

Titre: *Interaction laser-plasma à haute intensité : miroir plasma et génération d'harmoniques*

- **Cours à la « journée de formation aux technologies attosecondes », organisée par le réseau LASUR** (Palaiseau, 11 mai 2006)

Titre: *Méthodes de caractérisation temporelle pour les impulsions attosecondes*

- **Conférence nationale « 7^{èmes} journées des phénomènes ultra-rapides »** (Villeneuve d'Ascq, 5-7 décembre 2005)

Titre: *Les méthodes de caractérisation temporelle d'impulsions attosecondes*

- **Conférence internationale “ICOMP 2005 » - 10th International Conference on Multiphoton Processes”** (Orford, Canada, 9-14 Octobre 2005)

Titre: *Frequency-Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts*

- **Forum de l'Institut Laser-Plasma-ILP** (Autrans, 13-18 mars 2005)

Titre: *Interaction laser-plasma à la densité du solide : miroir plasma et génération d'harmoniques*

- **Conférence internationale “High-field attosecond physics”** (Oberurg, Autriche, 9-15 janvier 2005)

Titre: *Frequency-Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts*

- **Conférence internationale « 4th International Ultrafast Optics Conference », (29 juin-3 juillet 2003, Vienne, Autriche)**

Titre: *Temporal characterization of attosecond pulses*

- **Conférence nationale UVX 2000** (16-19 mai 2000, Porquerolles)

Titre: *Utilisation d'impulsions UV femtosecondes pour l'étude de la relaxation électronique dans SiO₂*

- **Conférence internationale « Laser-Induced Damage Conference »** (28 septembre au 1 octobre 1998, Boulder, USA)

Titre: *Subpicosecond studies of carrier dynamics in laser induced breakdown*

Annexe B

Sélection d'articles

Dans cette annexe sont reportés les articles les plus importants que j'ai publiés depuis la fin de ma thèse. Il s'agit de :

1. Quatre articles sur les techniques de mesure d'impulsions attosecondes, qui portent sur les quatre sujets suivants
 - (i) le principe de la caméra à balayage attoseconde :
Physical Review Letters **88**, 173903 (2002) - 137 citations
 - (ii) le principe de SPIDER attoseconde :
Physical Review Letters **90**, 073902 (2003) - 50 citations
 - (iii) le principe de FROG CRAB :
Physical Review A **71**, 011401(R) (2005) - 50 citations
 - (iv) une synthèse de ces différentes techniques, présentées dans un formalisme unifié :
Journal of Modern Optics **52**, 339 (2005) - 37 citations
2. Cinq articles sur les miroirs plasmas, qui portent sur les sujets suivants
 - (i) une étude expérimentale et numérique détaillée des miroirs plasmas comme interrupteurs optiques ultrarapides :
Physical Review E **69**, 26402 (2004) - 62 citations
 - (ii) le mécanisme de génération d'harmoniques par émission cohérente de sillage :
Physical Review Letters **96**, 125004 (2006) - 32 citations
 - (iii) l'observation expérimentale des harmoniques associées aux deux mécanismes de génération sur miroir plasma :
Nature Physics **3**, 424 (2007) - 42 citations
 - (iv) l'étude des propriétés de phase des harmoniques individuelles :
Physical Review Letters **100**, 095004 (2008) - 10 citations
 - (v) la mesure de la dépendance en intensité de la phase des harmoniques de sillage :
Nature Physics **4**, 631 (2008) - 2 citations

Attosecond Streak Camera

J. Itatani,¹ F. Quéré,¹ G. L. Yudin,¹ M. Yu. Ivanov,¹ F. Krausz,² and P. B. Corkum¹

¹*Steacie Institute for Molecular Sciences, National Research Council of Canada, Ottawa, Ontario, Canada K1A 0R6*

²*Institute für Photonik, Technische Universität Wien, Gusshausstrasse 27, A-1040 Wien, Austria*

(Received 29 August 2001; published 16 April 2002)

An electron generated by x-ray photoionization can be deflected by a strong laser field. Its energy and angular distribution depends on the phase of the laser field at the time of ionization. This phase dependence can be used to measure the duration and chirp of single sub100-attosecond x-ray pulses.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.88.173903

PACS numbers: 42.65.Ky, 41.50.+h

Historically, advances in our ability to measure fast phenomena have led to corresponding scientific advances [1]. It is now possible to use the physics of high harmonic generation for producing single attosecond (10^{-18} sec, asec) pulses in the extreme ultraviolet to soft x-ray regions [2,3]. The next frontier will be to utilize such ultrashort pulses to probe the electronic dynamics of atoms and molecules which occurs on the attosecond time scale [4]. However, one impediment for experimentally demonstrating attosecond pulses has been the problem of finding a good method for their characterization [5–7].

We present a method to determine the duration and chirp of a single attosecond x-ray pulse, based on the ionization of atoms by the x-ray photons in the presence of a strong low-frequency laser field. This method relies on two basic ideas. (i) The subcycle oscillation of the laser electric field is used as a time reference to determine the duration of the x-ray pulse. This can be done only if the x-ray pulse is shorter than the period of the oscillating field. (ii) The photoelectron signal generated by the x-ray pulse is resolved in energy and angle simultaneously. Depending on the laser-field polarization, the information on the pulse duration is contained in the width of the energy spectrum at a given observation angle (linear polarization), or in the width of the angular distribution at a given energy (circular polarization). We show that the resolution limit depends on the photon energy, bandwidth, and chirp of the x-ray pulse. The resolution improves with increasing photon energy, and is on the order of 70 asec at 100 eV for transform-limited pulses.

A group including two of the authors has implemented a closely related configuration, where the photoelectrons are collected in the direction perpendicular to the laser polarization, and successfully characterized x-ray pulses shorter than one oscillation period of the laser field used for their generation [3,8].

The ionization of atoms by x rays in the presence of laser fields has been used for several years to measure the duration of x-ray pulses longer than the optical period of the laser field. In these measurements, Auger electrons [9] or x-ray photoelectrons [10–12] are dressed by the laser field to cross correlate the x-ray pulse and the envelope of the laser pulse. Two effects are used for this cross correlation.

(i) The appearance of sidebands in the photoelectron energy spectrum due to the emission and absorption of laser photons by the x-ray generated photoelectrons. (ii) The ponderomotive shift of these peaks, due to the ac Stark shift of the continuum induced by the laser field.

As shown later, as the pulse duration falls below one period of the laser radiation, the sidebands broaden and merge, and the ponderomotive shift is no longer observable. Therefore, these cross-correlation methods cannot be directly extended to subcycle x-ray pulses.

By analyzing the dynamics of the electrons, we will show how the laser field affects the photoelectron distribution in the case of subcycle x-ray pulses, and how this effect can be used to characterize these pulses. The large difference in frequencies between the x-ray pulse Ω_X and the laser pulse ω_L naturally divides the two-color ionization process in two steps: absorption of an x-ray photon followed by acceleration in the laser field [13]. The x ray produces an electron with a kinetic energy $W_0 = m_e v_0^2/2 = \hbar\Omega_X - I_p$, where I_p is the ionization potential and \mathbf{v}_0 is the initial velocity. If the $U_p \gg \hbar\omega_L$ and $\hbar\Omega_X \gg I_p$, classical mechanics can be used to determine the time-dependent velocity $\mathbf{v}(t)$ in the field [14,15]. For the laser electric field $\mathbf{E}_L(t) = E_0(t)/\sqrt{1 + \varepsilon^2} \{\cos(\omega_L t + \varphi)\mathbf{e}_x + \varepsilon \sin(\omega_L t + \varphi)\mathbf{e}_y\}$ with ellipticity ε , this velocity is expressed as

$$\mathbf{v}(t) = -\frac{e}{m_e} \mathbf{A}(t) + \left[\mathbf{v}_0 + \frac{e}{m_e} \mathbf{A}(t_i) \right], \quad (1)$$

where $\mathbf{A}(t)$ is the vector potential of the field, $\mathbf{E}_L = -\partial\mathbf{A}/\partial t$, and t_i is the time of ionization.

In Eq. (1) the first term describes the electron's quiver motion and goes to zero as the laser pulse ends. The second term is determined by the initial condition $\mathbf{v}(t_i) = \mathbf{v}_0$ at the time of ionization. This term is the final drift velocity $\mathbf{v}_f = \mathbf{v}_0 + (e/m_e)\mathbf{A}(t_i)$ measured after the laser pulse. The fact that \mathbf{v}_f is different from \mathbf{v}_0 is the classical equivalent to the absorption, emission, and scattering of laser photons by the photoelectron [13,16].

The dashed circle of radius v_0 in Fig. 1 shows the electron velocity distribution in the xy plane ($v_{0,z} = 0$) produced by the x rays alone. The solid circle in Fig. 1 represents the drift velocity distribution in the presence of

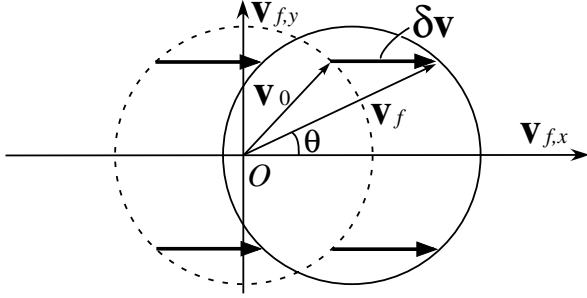


FIG. 1. Effect of a strong laser field on the photoelectrons ionized by the x-ray pulse at a given phase ϕ_i . Dashed circle—drift velocity distribution (v_{0x}, v_{0y}) of the photoelectrons without the laser field; solid circle—distribution with the laser field. Note that neither the uncertainty in \mathbf{v}_0 due to the bandwidth of the x-ray pulse nor the angular dependence of the emission probability are represented for simplicity.

$$\begin{aligned}
 K_L &= W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2 \phi_i \pm \alpha_L \sqrt{8W_0 U_p} \cos \theta \sin \phi_i, \\
 K_C &= W_0 - U_p \cos 2(\phi_i - \theta) \pm \alpha_C \sqrt{4W_0 U_p} \sin(\phi_i - \theta), \\
 \alpha_L &= \{1 - (2U_p/W_0) \sin^2 \theta \sin^2 \phi_i\}^{1/2}, \quad \alpha_C = \{1 - (U_p/2W_0) - (U_p/2W_0) \cos[2(\phi_i - \theta)]\}^{1/2}.
 \end{aligned} \tag{2}$$

Here K_L, K_C are the kinetic energies for linear and circular polarization of the laser field, respectively; $U_p = e^2 E_0^2(t_i)/4m_e \omega_L^2$ is the ponderomotive potential of the laser field at the time of ionization; θ is the angle of observation measured from the x axis as shown in Fig. 1; α_L and α_C are correction terms to the expression given in [8], and deviate from 1 when U_p becomes comparable to or higher than W_0 . If the field is increased to $U_p > W_0/2$ (linear polarization) or $U_p > W_0$ (circular polarization), some of the photoelectrons are deflected into the reverse direction from $\mathbf{v}(t_i) = \mathbf{v}_0$. The branches of negative signs account for these backscattered electrons, and are required only for this high intensity regime. In this case, another peak appears on the lower energy side of photoelectron spectra, which makes their interpretation more complex. Hereafter, we will restrict the discussion to $U_p < W_0/2$ (linear polarization) and $U_p < W_0$ (circular polarization).

There are many possibilities for measurement because the photoelectron spectra depend on the observation angle and the laser polarization. We will concentrate on three configurations. For a linearly polarized field, if we observe only electrons with \mathbf{v}_f parallel to the laser polarization, Eq. (2) shows that the drift energy will sweep above and below W_0 as the phase of birth varies from 0 to 2π . If we observe only electrons with \mathbf{v}_f perpendicular to the laser polarization, Eq. (2) shows that it will sweep only below W_0 twice per laser period. Measurements that are angle integrated will have a degraded resolution. In circularly polarized light, if we observe only electrons of a given energy, then their direction will sweep. For any polarization, measurements that are energy integrated [5] will have a degraded resolution.

the laser field. It is a translation of the dashed circle by $\delta \mathbf{v} = (e/m_e) \mathbf{A}(t_i)$. For linearly polarized light ($\varepsilon = 0$), the translation is parallel to the electric field, and the electron distribution sweeps back and forth along the field direction as t_i varies. For circularly polarized light ($\varepsilon = \pm 1$), the electron distribution is displaced perpendicular to the laser electric field at the moment of birth, and it rotates around the dashed circle as the time of ionization is varied.

For all polarizations, electrons that are freed at slightly different times t_i will have different final velocities because of the dependence of \mathbf{v}_f on the optical phase $\phi_i = \omega_L t_i + \varphi$. It is this phase dependence that offers an opportunity for the measurement of subcycle duration. To evaluate the temporal resolution, it is convenient to reformulate Eq. (1) in terms of the drift kinetic energy $K = m_e v_f^2/2$ for electrons moving in the xy plane:

With a linearly polarized field, the width ΔE of the angle-resolved photoelectron spectrum is determined by the following factors: (i) the variation of the moment of birth of photoelectrons due to the x-ray pulse duration, and (ii) the bandwidth and the chirp of the x-ray pulse. Thus, the duration and chirp can be determined by comparing the spectra with and without the laser field.

For a transform-limited x-ray pulse, the width of a photoelectron spectrum is given as $\Delta E[\tau_X, \Delta(\hbar\Omega_X)] = \{(|\partial K/\partial \phi_i| \omega_L \tau_X)^2 + [|\partial K/\partial W_0| \Delta(\hbar\Omega_X)]^2\}^{1/2}$ provided that the streaking speed $\partial K/\partial \phi_i$ is constant within the x-ray pulse. Within one optical period, the best temporal resolution is achieved at the phase that maximizes the resolving parameter $\beta_L \equiv (|\partial K/\partial \phi_i| \omega_L \tau_X)/\{|\partial K/\partial W_0| \Delta(\hbar\Omega_X)\}$. It occurs at $\phi_i = m\pi$ for $\theta = 0$ or $\phi_i = (m/2 + 1/4)\pi$ for $\theta = \pi/2$, respectively. β_L scales as $v_0 E_0(t_i) \tau_X^2$ for $\theta = 0$ and $E_0^2(t_i) \tau_X^2$ for $\theta = \pi/2$. Physically, as the x-ray pulse duration decreases, its bandwidth increases as $\propto 1/\tau_X$ and the contribution of sweeping to the photoelectron bandwidth ΔE decreases as $\propto \tau_X$.

We set the condition for the resolution limit as $\beta_L = 1$, i.e., the x-ray bandwidth is equal to the broadening by the laser streak. This is the criterion used in traditional streak cameras. For transform-limited x-ray pulses at 100 eV, the resolution limit is 70 asec for $\theta = 0$ and 100 asec for $\theta = \pi/2$. Here we assumed helium as an ionizing atom ($I_p = 24.6$ eV), laser wavelength $\lambda_L = 0.8 \mu\text{m}$, and the intensity of the laser field set by $U_p = W_0/2$ ($I = 6.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

One drawback of using a linearly polarized laser field is that the streaking speed $\partial K/\partial \phi_i$ varies within the laser period, as seen in Eq. (2). If the x-ray pulse duration

becomes close to the streaking period, the streaking speed will change within the x-ray pulse, which will make the data interpretation more complicated. This difficulty can be removed by using a circularly polarized laser field.

With circularly polarized light, a photoelectron at a given kinetic energy streaks in angle as shown in Eq. (2). This angular spread $\Delta\theta$ of photoelectron distribution in the xy plane can be used to measure the duration of x-ray pulses. The main advantage of this configuration is that the streaking speed is constant over the whole optical cycle, and is automatically calibrated by the frequency of the laser field. This method generalizes the concept of the attosecond streak camera [5], which is based on the measurement of the angular distribution of photoelectrons without resolving the kinetic energy. Energy-integrated measurements require $U_p \gg W_0$, a condition difficult to achieve experimentally. The temporal resolution of this configuration is again limited by the bandwidth of the x-ray pulse and is similar to that for linear polarization (70 asec for 100 eV photons).

The electron spectrum can also be calculated quantum mechanically [atomic units are used for compactness in Eqs. (3) and (4)]. Following [17], the amplitude of populating a state $|\mathbf{v}\rangle$ with kinetic momentum \mathbf{v} at a moment T after the end of both the laser and the x-ray pulses is

$$a_{\mathbf{v}}(T) = -i \int_{-\infty}^T dt \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t) e^{-i \int_t^T dt' (1/2[\mathbf{p}(t')]^2 + I_p)}, \quad (3)$$

where $\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ is the instantaneous kinetic momentum, and $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}$ is the dipole transition matrix element from the ground state to the continuum with kinetic momentum $\mathbf{p}(t)$. The x-ray field $\mathbf{E}_X(t)$ includes the fast oscillations of the carrier, chirp, and the pulse envelope.

We assume that the x-ray pulse is a linearly chirped Gaussian, with dimensionless chirp ξ defined in the spectral domain as $\tilde{E}_X(\Omega) \sim \exp[-(\Omega - \Omega_X)^2 \tau^2 (1 - i\xi)/2]$. In time domain, positive chirp $\xi > 0$ corresponds to the instantaneous frequency increasing with time: $E_X(t) \sim \exp[-(t - t_0)^2 (1 + i\xi)/2\tau^2 (1 + \xi^2) - i\Omega_X t]$, where t_0 is the peak of the x-ray pulse and its duration is $\tau_X \sim \tau\sqrt{1 + \xi^2}$. For a sufficiently short x-ray pulse, Eq. (3) can be approximated using the saddle point method, so we have

$$|a_{\mathbf{v}}|^2 \propto \frac{|\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t_0)} \mathbf{E}_X(t_0)|^2}{\mu} \exp\left[-\left(\frac{\mathbf{p}^2(t_0)}{2} - W_0\right)^2 \frac{\tau^2}{\mu^2}\right], \quad (4)$$

$$\mu = \sqrt{(1 + \eta\xi)^2 + \eta^2}, \quad \eta = \mathbf{E}_L(t_0) \mathbf{p}(t_0) \tau^2.$$

Equations (3) and (4) apply for all directions of observation and laser polarizations. In the field-free case $\mu = 1$ and Eq. (4) corresponds to the spectrum of the x-ray pulse shifted by $-I_p$. Equation (4) shows that, in the presence of the laser pulse, the width of the electron spectrum depends on $\mathbf{E}_L(t_0)$ at the peak of the x-ray pulse. To measure the x-ray pulse duration, one must produce an observable change in μ .

Figure 2a shows photoelectron spectra in the direction parallel to the laser polarization produced by 70 asec (full width at half maximum, FWHM) transform-limited x-ray pulses for the same condition that we used to derive the resolution limit above. The center of the x-ray pulse is set at the maximum of the laser field ($\omega_L t_0 + \varphi = 0$). The solid curve corresponds to the field-free spectrum. In the presence of the laser field, classical [open circles, from Eq. (2)] and quantum-mechanical [dotted curve, from Eq. (3)] calculations agree well. The laser field broadens the spectrum by $\sqrt{2}$ as predicted in the semiclassical analysis above.

In the case of a chirped x-ray pulse, substantial modification of the spectrum can be achieved when $\eta\xi \sim 1$, which for large chirps allows one to deal with larger bandwidth $\Delta\Omega_X \sim 1/\tau$. Physically, if the photoelectrons are positively streaked ($\partial K/\partial\phi_i > 0$), the width of the photoelectron spectrum will be larger than the transform-limited case for positive chirp of the x-ray pulse, and narrower for negative chirp. Equation (4) allows us to determine both the sign and the magnitude of the chirp.

Figure 2b shows the photoelectron spectra produced by chirped x-ray pulses (70 asec FWHM, $\xi = \pm\sqrt{3}$). The spectra are calculated using Eq. (3) [Eq. (4) gives almost identical results]. Other conditions are the same as in

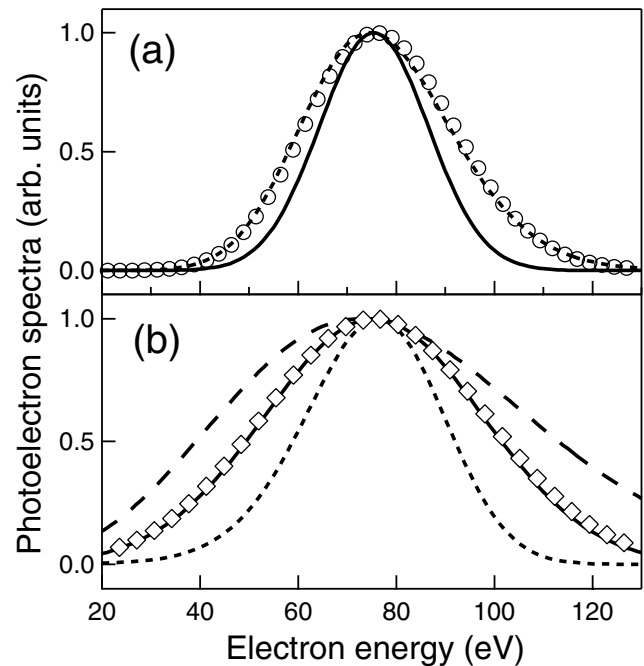


FIG. 2. (a) The photoelectron spectra produced by a transform-limited x-ray pulse (70 asec FWHM). Solid curve—field-free case; dotted curve—with a laser field ($I = 6.3 \times 10^{14}$ W/cm²). The classical result is shown by open circles. (b) The photoelectron spectra produced by chirped x-ray pulses (70 asec FWHM, $\xi = \pm\sqrt{3}$). Solid curve—field-free case; dashed curve is for the positive chirp; dotted curve is for the negative chirp. Open diamonds are for the transform-limited case (35 asec FWHM, $\xi = 0$). The field intensity is the same as in (a).

Fig. 2a. The solid line shows the field-free photoelectron spectrum. Depending on the sign of the chirp, we can clearly see the broadening or narrowing of the spectrum. For a transform-limited pulse (35 asec FWHM, $\xi = 0$), the broadening can hardly be seen (open diamonds in Fig. 2b).

In the above analysis, we have made a number of implicit assumptions that might influence experiments. Shot-to-shot fluctuation of the streaking phase ϕ_i will increase the width of the photoelectron spectra and degrade the temporal resolution. In high harmonic generation, the most likely source of attosecond pulses, the x-ray pulses are naturally phase locked to the driving laser pulses. Therefore, the combination of these x-ray and laser pulses is ideal for the attosecond streak camera. Fluctuation of the field intensity ($\propto U_p$) will also degrade the resolution. However, with Ti:sapphire lasers we can expect a good stability of $\sim 5\%$.

The maximum temporal resolution requires the highest feasible intensity of the laser field. Above-threshold ionization (ATI) by the laser field alone can produce a significant number of background electrons which limit the intensity that can be used. There are three ways to minimize the influence of ATI electrons. (i) A few-cycle laser pulse reduces the total ionization probability at a given intensity [8]. (ii) ATI tends to produce low energy electrons directed along the laser polarization. The energy and angle of observation can be chosen to reduce their influence [8]. (iii) For the linearly polarized case, the small background of rescattered electrons can be suppressed by introducing a slight ellipticity to the field.

Angular dependence of the photoionization cross section may seem to present a problem for correctly interpreting the observed photoelectron spectrum. However, it is technically feasible to cancel this anisotropy by integrating the photoelectron signal while rotating the polarization of the x-ray pulse with respect to the laser polarization. In the case of high harmonics, this can be done by rotating the polarization direction of the laser pulses used for x-ray generation.

Before concluding, we revisit the multicycle measurements from a subcycle perspective. As we have seen, the strong laser field distorts the photoelectron spectrum on the subcycle time scale. This effect corresponds to a frequency modulation of the photoelectron wave function within the laser optical cycle. If the x-ray pulse is longer than the laser period τ_L , this modulation is repeated identically every optical cycle. This leads to a temporal periodicity of the wave function, which is responsible for the appearance of sidebands spaced by $\hbar\omega_L$ in the energy spectrum.

The positions of the sidebands are determined by the phase shift of the wave function that occurs from one optical cycle to the following one. This is analogous to the frequency comb spectrum of a pulse train from a mode-locked

laser. The position of the comb is determined by the shift of the carrier-envelope optical phase from pulse to pulse [18,19]. For the electrons, a similar phase shift occurs because an electron born at time t makes one oscillation more in the laser field than one born at $t + \tau_L$. The quantum phase acquired during this extra oscillation is $2\pi U_p / \hbar\omega_L$, and accounts for the ponderomotive shift of the sidebands by $-U_p$.

In conclusion, the attosecond streak camera will allow resolution ≤ 100 asec. To realize this resolution experimentally, any phase variation of the laser field with respect to the x-ray pulse must be less than $2\pi(\tau_X/\tau_L)$ over the interaction volume and between laser shots. This criterion appears achievable for attosecond x-ray pulses produced by high harmonic generation.

This work is supported in part by Photonics Research Ontario.

Note added.—Recently isolated attosecond pulses [3] as well as a train of pulses [20] were successfully characterized using x-ray photoionization of atoms in a laser field. The former [3] is closely related to our proposed method, but utilizes the broadening of photoelectron spectra due to a large angle of collection. The latter [20] is not directly related to our method, but, by using Eq. (3), this experiment can be understood as the interference of photoelectron wave packets with laser-induced phase shifts (see also [21]).

-
- [1] A. H. Zewail, *J. Phys. Chem. A* **104**, 5660 (2000).
 - [2] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000), and references therein.
 - [3] M. Hentschel *et al.*, *Nature (London)* **414**, 509 (2001).
 - [4] F. Krausz, *Phys. World* **14**, 41 (2001).
 - [5] E. Constant *et al.*, *Phys. Rev. A* **56**, 3870 (1997).
 - [6] Y. Kobayashi *et al.*, *Opt. Lett.* **23**, 64 (1998).
 - [7] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 412 (2001).
 - [8] M. Drescher *et al.*, *Science* **291**, 1923 (2001).
 - [9] J. M. Schins *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180 (1994).
 - [10] T. E. Glover *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2468 (1996).
 - [11] A. Bouhal *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 950 (1997).
 - [12] E. S. Toma *et al.*, *Phys. Rev. A* **62**, 061801(R) (2000).
 - [13] A. M. Dykhne and G. L. Yudin, *Usp. Fiz. Nauk* **121**, 157 (1977) [*Sov. Phys. Usp.* **20**, 80 (1977)]; *Usp. Fiz. Nauk* **125**, 377 (1978) [*Sov. Phys. Usp.* **21**, 549 (1978)].
 - [14] T. F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2304 (1988).
 - [15] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1259 (1989).
 - [16] E. Yablonovitch, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 795 (1988).
 - [17] M. Lewenstein *et al.*, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
 - [18] D. J. Jones *et al.*, *Science* **288**, 635 (2000).
 - [19] A. Apolonski *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 740 (2000).
 - [20] P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001).
 - [21] F. Quéré *et al.* (to be published).

Attosecond Spectral Shearing Interferometry

F. Quéré,* J. Itatani, G. L. Yudin, and P. B. Corkum

Steele Institute for Molecular Sciences, National Research Council of Canada, Ottawa, Ontario, Canada K1A 0R6
(Received 18 December 2001; published 21 February 2003)

We show that the complete characterization of arbitrarily short isolated attosecond x-ray pulses can be achieved by applying spectral shearing interferometry to photoelectron wave packets. These wave packets are coherently produced through the photoionization of atoms by two time-delayed replicas of the x-ray pulse, and are shifted in energy with respect to each other by simultaneously applying a strong laser field. The x-ray pulse is reconstructed with the algorithm developed for optical pulses, which requires no knowledge of ionization physics. Using a 800-nm shearing field, x-ray pulses shorter than ~ 400 asec can be fully characterized.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.90.073902

PACS numbers: 42.65.Ky, 32.80.Wr, 41.50.+h, 42.65.Re

The production of single attosecond ($1 \text{ asec} = 1 \times 10^{-18} \text{ sec}$) soft-x-ray pulses [1,2] has opened the route to probing electronic dynamics in atoms, molecules, and solids [3]. However, accurately characterizing their temporal profile is a challenge that must be overcome if attosecond science is to develop rapidly. Several methods have been proposed to determine the pulse duration [2,4,5], mostly based on the photoionization of atoms by the x-ray pulse in the presence of a strong laser field. The best resolution estimated thus far is ~ 100 asec [5]. None of these methods, however, completely characterizes the attosecond pulse, because they do not fully measure its phase properties.

One method for the complete characterization of ultrashort visible light pulses is spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction (SPIDER) [6]. SPIDER measures the relative phases of the different frequency components. Critical to SPIDER is a frequency shift $\Delta\Omega$ induced between two replicas of the light pulse to be characterized, delayed by a time τ . If $\tilde{E}(\Omega) = A(\Omega)e^{i\varphi(\Omega)}$ is the spectrum of the unknown pulse, then the total spectral intensity $S_T(\Omega)$ of these frequency-shifted twin pulses is given by

$$S_T(\Omega) = |\tilde{E}(\Omega) + e^{i\Omega\tau}\tilde{E}(\Omega - \Delta\Omega)|^2. \quad (1)$$

The two pulses interfere in the frequency domain and, because of the time shift τ , $S_T(\Omega)$ has fringes. The frequency shift $\Delta\Omega$ causes a modulation to the positions of these fringes, which provides information on the slowly varying spectral phase $\varphi(\Omega)$.

$\varphi(\Omega)$ can be retrieved from three experimentally measured quantities, $S_T(\Omega)$, τ , and $\Delta\Omega$ [6]. Knowing $A(\Omega)$ —which is measured independently with a spectrometer—and $\varphi(\Omega)$, the full temporal profile of the pulse is obtained by a Fourier transformation.

SPIDER cannot be directly applied to attosecond x-ray pulses, because no nonlinear optical process is available in this spectral range to induce the frequency shift $\Delta\Omega$. We demonstrate that the spectral phase of these pulses can be measured by applying SPIDER to photoelectron wave

packets. These wave packets are produced by the photoionization of atoms, in the presence of a laser field, by two delayed but otherwise identical replicas of the attosecond x-ray pulse. The laser field provides the energy (frequency) shift between these wave packets. We thus determine the phase structure of the wave packet, from which the spectral phase of the attosecond x-ray pulse can be directly deduced.

We first describe attosecond SPIDER qualitatively, then, using the strong field approximation, we derive equations that prove the connection with optical SPIDER. Finally, we simulate an experiment and apply the usual SPIDER reconstruction algorithm to retrieve the pulse that we assumed in the simulation.

Qualitatively, two replicas of the x-ray pulse, shifted in time by τ , have a modulated optical spectrum S_T , and therefore generate a modulated photoelectron spectrum S_e . An alternative interpretation of these fringes is that the two x-ray pulses generate two identical wave packets, shifted in time, which interfere just as light pulses, and thus produce the fringes in S_e . The measurement of S_e is spectral interferometry with wave packets [7].

The energy shift between these two wave packets can be induced by ionizing the atoms in the presence of a time-dependent electric field. We will assume that the field consists of an intense linearly polarized laser field $\mathbf{E}_L(t') = E_0(t')\cos(\omega_L t')\mathbf{e}_L$. In this case, the final energy W of an electron ionized at time t by the absorption of one x-ray photon is, according to classical mechanics [2,5],

$$W \approx W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2 \omega_L t + \sqrt{8W_0 U_p} \cos \theta \sin \omega_L t, \quad (2)$$

where W_0 is the electron energy at the time of ionization, $U_p = E_0^2/4\omega_L^2$ ($\ll W_0$) is the ponderomotive energy (atomic units are used throughout the paper), and θ is the angle of observation of the photoelectron, measured from the polarization direction \mathbf{e}_L of the laser field.

The laser field induces a change $\delta W = W - W_0$ of the electron energy. δW depends on the peak strength

$E_0(t)$ and the phase $\omega_L t$ of the laser field at the time of ionization, and on the observation angle θ . If the x-ray field consists of two identical pulses, centered at $t = t_0$ and $t = t_0 + \tau$, and short compared to the laser period, the laser field induces a well-defined energy shift $\Delta W = \delta W(t_0 + \tau) - \delta W(t_0)$ between the two corresponding wave packets, provided that we observe the photoelectrons in a given direction, and choose the phase of the laser field and the delay between the x-ray pulses appropriately.

Of the possible angles of observation, Eq. (2) shows that, at $\theta = \pi/2$, the energy shift ΔW is independent of the photoelectron energy just as it is in optical SPIDER. At $\theta = \pi/2$, of the possible delays between the twin pulses, the maximum energy shift $2U_p$ occurs when they are separated by $\omega_L \tau = 2\pi(n/2 + 1/4)$ and phased so one is synchronized to the peak of the electric field ($\omega_L t_0 = 0$) and the other to the zero crossing.

We now confirm this qualitative discussion, using the strong field approximation [8,9] to derive an equation for attosecond SPIDER that is analogous to Eq. (1). The transition amplitude to the final continuum state $|\mathbf{v}\rangle$ with momentum \mathbf{v} is given by

$$a_{\mathbf{v}} = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t) e^{-i \int_t^{+\infty} dt' [\mathbf{p}^2(t')/2 + I_p]}, \quad (3)$$

$\mathbf{E}_X(t)$ is the x-ray electric field. $\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ is the instantaneous momentum of the free electron in the laser field, $\mathbf{A}(t)$ being the vector potential of this field, such that $\mathbf{E}_L(t) = -\partial \mathbf{A}/\partial t$. $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}$ is the dipole transition matrix element from the ground state to the continuum state with momentum $\mathbf{p}(t)$. I_p is the ionization potential of the atom. We define $\Phi(t, \mathbf{v})$ as the integral in the exponential of Eq. (3). $\Phi(t, \mathbf{v}) - I_p t$ is the phase acquired by an electron with an initial momentum $\mathbf{p}(t)$ at the time of ionization t , during its motion in the continuum from t to $+\infty$, in the presence of the laser field.

When the x-ray field consists of twin pulses, and these pulses are much shorter than the laser period, the photoelectron energy spectrum $S_e(W) = |a_{\mathbf{v}}|^2$ is given by

$$S_e(W) = |\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t_0)} \mathbf{F}_{t_0}(W) + e^{i[W\tau + \chi]} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t_0 + \tau)} \mathbf{F}_{t_0 + \tau}(W)|^2, \quad (4)$$

$$\mathbf{F}_{t_X}(W) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{E}_X(t) e^{i[W - \delta W(W, t_X) + I_p](t - t_X)},$$

$$\chi = [U_p + I_p]\tau + \Delta\Phi_1 + \Delta\Phi_2,$$

with $t_X = t_0$ or $t_0 + \tau$, $\Delta\Phi_1 = -(U_p/2\omega_L)[\sin 2\omega_L t]_{t_0}^{t_0 + \tau}$, and $\Delta\Phi_2 = (\sqrt{8U_p W}/\omega_L) \cos\theta [\cos \omega_L t]_{t_0}^{t_0 + \tau}$. As long as $U_p \ll W_0/2$, $\delta W(W_0, t)$ in Eq. (4) can be deduced from Eq. (2) [5].

Equation (4) is almost identical to Eq. (1) that describes optical SPIDER. An energy shift $\Delta W = \delta W(t_0 + \tau) - \delta W(t_0)$ arises from the integral for $\mathbf{F}_{t_X}(W)$ evaluated at $t_X = t_0$ and $t_X = t_0 + \tau$. ΔW corresponds to the spectral shift $\Delta\Omega$ in Eq. (1). The term $W\tau$ corresponds to $\Omega\tau$ in

Eq. (1), and is responsible for the appearance of fringes. Equation (4) thus describes interference of spectrally sheared photoelectron wave packets generated by twin attosecond pulses. This SPIDER spectrum therefore gives access to the spectral phase of $d_{\mathbf{p}} \tilde{E}_X(\Omega)$ [where $\tilde{E}_X(\Omega)$ is the spectrum of the x-ray field], i.e., to the spectral phase of the electron wave packet.

There are two effects in Eq. (4) that do not occur in the optical analogue: In general, χ and ΔW depend on the photoelectron energy W . However, at $\theta = \pi/2$, both dependences vanish and Eq. (4) exactly maps onto optical SPIDER [Eq. (1)]. At other angles, χ is constant only if we choose the delay τ between the x-ray pulses and the phase of the laser field so that $[\cos \omega_L t]_{t_0}^{t_0 + \tau} = 0$ (i.e., $\Delta\Phi_2 = 0$), and the energy dependence of ΔW can be neglected if the spectral width $\Delta\Omega_X$ of the x-ray pulse is small enough [i.e., $\partial(\Delta W)/\partial W_0 \cdot \Delta\Omega_X \ll \Delta W$]. With the energy dependences of χ and ΔW minimized, the conventional SPIDER algorithm [6] can be used directly.

To retrieve the spectral phase of the x-ray pulse, the frequency dependence of the phase of the dipole transition matrix element $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$ must be known. The dipole phase can be obtained analytically in the case of a one-electron atom. For a two-electron atom (e.g., He), the dipole phase can be calculated if the x-ray photon energy is above the two-electron ionization threshold. The energy dependence of $|\mathbf{d}_{\mathbf{p}}|$ does not affect the spectral phase obtained by this method, just as the spectral dependence of the up-conversion efficiency does not affect optical SPIDER [6].

We now use Eq. (3) to simulate an experiment. In the simulations, $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$ is assumed to be constant for simplicity. Figure 1(a) shows two photoelectron spectra observed in the perpendicular direction ($\theta = \pi/2$), generated by a transform-limited Gaussian x-ray pulse of duration $\tau_X = 12.5$ asec (≈ 0.5 a.u., FWHM of intensity profile), in the presence of a laser field. Although such an x-ray pulse duration is beyond what can presently be achieved experimentally [2], we choose these parameters to demonstrate that there is no minimum time resolution limit that is intrinsic to SPIDER.

The full line in Fig. 1(a) corresponds to $\omega_L t_0 = 0$ (the first pulse at the peak of the laser electric-field), and the dotted one to $\omega_L(t_0 + \tau) = \pi/2$ (the second pulse at the zero crossing of the laser electric-field). As expected from Eq. (2), the first of these spectra is identical to the one obtained in the absence of the laser field (dots), while the second one is an undistorted copy shifted by $-2U_p$. These spectra do not change even if the x-ray pulse is chirped, as long as other parameters are kept constant.

Figure 1(b) shows the photoelectron spectrum when both pulses ionize the atom in the presence of the laser field. Interference fringes of periodicity $\sim 4\omega_L$ are observed because of the time separation $\tau = \pi/2\omega_L$ between the pulses. The detailed structure of these fringes depends on the spectral phase of the x-ray pulse. This is

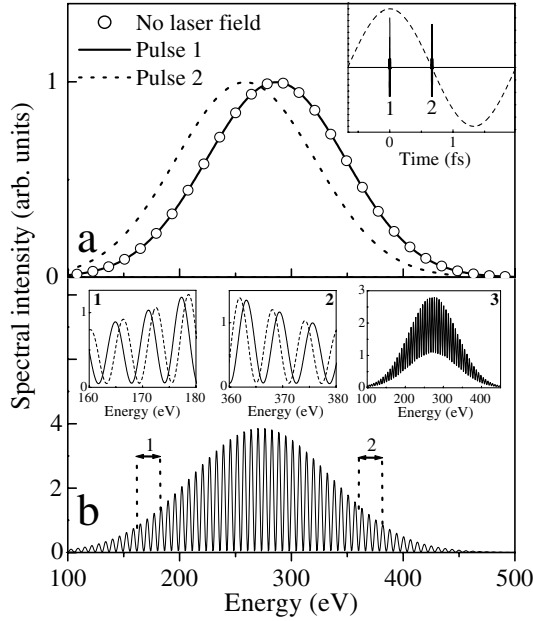


FIG. 1. (a) Photoelectron spectra from hydrogen atoms ($I_p = 13.6$ eV) at $\theta = \pi/2$, produced by each of the two x-ray pulses shown in the inset ($\tau_X = 12.5$ asec, $\xi = 0$, $\Omega_X = 300$ eV) in the presence of a laser field ($\lambda = 800$ nm, $I = 230$ TW/cm², $U_p = 13.8$ eV). The open circles show the spectrum obtained in the absence of the laser field. The dashed line in the inset shows the laser field. (b) Photoelectron spectrum obtained when both pulses successively excite the atom in the laser field. Insets 1 and 2 compare the interference patterns obtained with $\xi = 0$ (full line) and $\xi = 4$ (dashed line). Inset 3 shows the spectrum obtained when $\omega_L t_0$ fluctuates, following a Gaussian distribution with a 10° FWHM.

illustrated in insets 1 and 2 of Fig. 1(b), where we compare the fringes obtained for transform-limited ($\tau_X = 12.5$ asec) and linearly chirped ($\tau_X = 50$ asec, $\xi = 4$) pulses with the same spectral width $\Delta\Omega_X$. Here ξ is a dimensionless chirp parameter [5], and $\tau_X \sim \sqrt{1 + \xi^2/\Delta\Omega_X}$. In these conditions, when the pulse is positively chirped, the fringes are observed to shift to higher energies on the low-energy side of the spectrum, and to lower energies on the high-energy side. The reverse would occur for a negatively chirped pulse. At the center of the spectrum, the fringes are unaffected by the chirp. In other words, information on the spectral phase is provided by the fringe spacing.

To reconstruct $\varphi(W)$ from the photoelectron spectrum, we use the same algorithm as in conventional SPIDER [6]. It consists of the following steps. (i) The SPIDER spectrum is Fourier transformed, (ii) a spectral window is applied to the positive-frequency branch of this function, (iii) this filtered function is inversely Fourier transformed to obtain $\Delta\varphi(W) = \varphi(W - \Delta W) - \varphi(W)$, and then (iv) $\Delta\varphi(W)$ is integrated to get the spectral phase $\varphi(W)$. The circles in Fig. 2 show the spectral phase $\varphi(W)$ obtained when the algorithm is applied to the simulated

spectrum shown in Fig. 1 corresponding to the chirped pulse. As can be seen, it reproduces the x-ray spectral phase $\varphi(W)$ (full line) very accurately.

The squares in Fig. 2 show the spectral phase $\varphi(W)$ deduced from an interferometric photoelectron spectrum S_e measured in the direction $\theta = 0$, using the conventional SPIDER retrieval algorithm. We use the same x-ray pulse as in Fig. 1 ($\xi = 4$, $\tau_X = 50$ asec). The laser intensity is now 1.4 TW/cm², with $\omega_L t_0 = -\pi/2$ and $\omega_L(t_0 + \tau) = \pi/2$ —leading to the maximum energy shift $\sqrt{8W_0 U_p}$ between the two wave packets. At $\theta = 0$, the energy shear ΔW depends on the photoelectron energy, and the conventional SPIDER algorithm is no longer exact, as can be seen from the slight difference between the retrieved and exact spectral phases in Fig. 2.

Figure 2 confirms that, for measurements at $\theta = \pi/2$, we can apply the phase retrieval algorithm developed for optical pulses [6] without modification. No knowledge of ionization physics is needed. In other directions, the SPIDER spectra can still be measured but, for accurate phase reconstruction, a small modification is needed in the last step (iv) of the retrieval algorithm to take into account the dependence of the laser-induced energy shift on the x-ray photon energy.

The angle dependence of SPIDER results implies that the finite acceptance angle of an electron spectrometer affects the measurement. Both ΔW and $\Delta\Phi_2$ in Eq. (4) depend on the observation angle θ , so that increasing the collection angle of the photoelectrons leads to a reduction of the fringe contrast. At $\theta = 0$, the angular dependence does not impose a severe limitation because $\partial(\Delta W)/\partial\theta = \partial(\Delta\Phi_2)/\partial\theta = 0$. Our calculations show that an angular acceptance as large as 40° is adequate for the conditions considered above. This large angular acceptance is a major advantage of this configuration. At $\theta = \pi/2$, both derivatives are nonzero, so that the angular acceptance is reduced to $\sim 2^\circ$.

We see no impediment to attosecond SPIDER experiments. In high-harmonic generation, the most likely

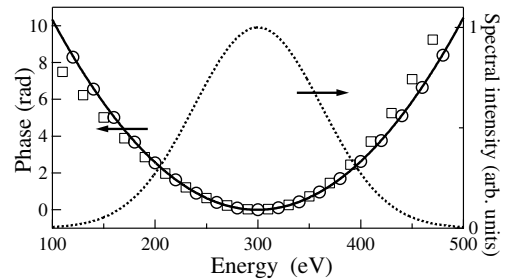


FIG. 2. Comparison between the spectral phases retrieved from SPIDER spectra and the exact spectral phase $\varphi(W)$ ($\xi = 4$, full line). Circles: retrieved from the spectrum in Fig. 1(b) ($\theta = \pi/2$). Squares: retrieved from the spectrum measured at $\theta = 0$. In both cases, the energy shift $\Delta W \approx 27$ eV. The dotted line shows $|\tilde{E}_X(\Omega)|^2$.

source of attosecond pulses, the x-ray pulses are phase locked and collinear to the driving laser pulse, which therefore provides an ideal dressing field to induce the energy shift. The fringe spacing is of the order of several eV, which is easily resolved with an electron spectrometer. Retrieving the spectral phase from the SPIDER spectrum requires knowledge of the delay τ and the energy shift ΔW . τ is deduced from the fringe spacing in the absence of the laser field, while ΔW is measured by alternatively blocking each of the twin x-ray pulses. Two replicas of a single attosecond x-ray pulse can be produced using a comblike mirror, with a teeth depth of ~ 100 nm. Each pulse reflects from a different depth, and we use the zero order signal from this “grating.” If this mirror is made out of one block of material, shot-to-shot fluctuations in the delay τ are avoided.

Adjusting the relative phase $\omega_L t_0$ of the laser field with respect to the x-ray pulses requires some moving parts, which could introduce shot-to-shot fluctuations in this phase. Their effect on the energy shift ΔW will be minimized, since we chose t_0 to satisfy $\partial(\Delta W)/\partial t|_{t=t_0} = 0$. However, changes in t_0 affect the phase shift χ induced between the two wave packets by the laser field. Therefore, the fluctuations in t_0 will result in a blur of the fringes, and reduce their contrast, as seen in inset 3 of Fig. 1(b). Provided that the fringes are visible, this does not induce any error in the phase retrieval. For a given fluctuation amplitude, the blurring of the fringes increases with the laser intensity. This will limit the maximum energy shift that can be induced, and, consequently, the ultimate temporal resolution of attosecond SPIDER.

Individual femtosecond x-ray pulses [10], as well as trains of attosecond pulses as short as 250 asec [11], have been characterized using the sidebands induced in the photoelectron spectrum by the laser field. Before concluding, we present an analysis which connects these methods to the attosecond streak camera [5] and attosecond SPIDER.

Assuming that the laser field varies as $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t)$, the transition amplitude a_v can be calculated analytically for any x-ray field:

$$a_v = \sum_{m,n=-\infty}^{+\infty} (-1)^m i^n J_m(M) J_n(N) \tilde{R}_X(W + I_p + \omega_{mn}), \quad (5)$$

where W is the final energy of the photoelectron, $J_k(z)$ are the Bessel functions, $M = U_p/2\omega_L$, $N = 2\sqrt{U_p}(\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_L)/\omega_L$, $\omega_{mn} = \omega_L(2M + 2m + n)$, and $\tilde{R}_X(\omega)$ is the Fourier transform of $R_X(t) = \mathbf{d}_{p(t)} \cdot \mathbf{E}_X(t)$. Equation (5) shows that the photoelectron spectrum consists of an ensemble of sidebands. These sidebands are induced by the $A^2(t)$ and the $\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t)$ terms in $\Phi(t, \mathbf{v})$ [see Eq. (3)], which, respectively, lead to the $J_m(M)$ and $J_n(N)$ terms in Eq. (5). The first kind of sidebands extends up to $|m| \sim M$

with a spacing of $2\omega_L$, while the second kind extends up to $|n| \sim N$ with a spacing of ω_L . There is also a correspondence between these two processes and the second and third terms on the right-hand side of Eq. (2), derived using classical mechanics.

In the case of a single x-ray pulse shorter than the laser period, the sidebands broaden and overlap. The photoelectron spectrum therefore depends on their interferences. By appropriately choosing the laser phase, these interferences can either lead to spectral distortions that are used in the attosecond streak camera [5], or can shift the whole photoelectron spectrum without distortion, making attosecond SPIDER possible.

In conclusion, we introduced a method for measuring extremely short (~ 1 a.u.) x-ray pulses. However, attosecond SPIDER also allows measurement of currently accessible pulses. For example, using parallel observation, an 800-nm 10-GW/cm² shearing field, and with the twin pulses separated by 1.5 periods, we can reconstruct the spectral phase of a 400-asec pulse centered at 100 eV. 400-asec pulses are near the upper limit for accurate reconstruction using 800-nm shearing fields.

Discussions with M. Yu. Ivanov, I. A. Walmsley, T. Seideman, and H. G. Muller are gratefully acknowledged. This work was partly supported by Photonics Research Ontario.

*Current address: CEA/DSM/DRECAM/SPAM, CEA Saclay, 91 191 Gif-sur-Yvette, France.

- [1] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000), and references therein.
- [2] M. Drescher *et al.*, *Science* **291**, 1923 (2001); M. Hentschel *et al.*, *Nature (London)* **414**, 509 (2001).
- [3] M. Drescher *et al.*, *Nature (London)* **419**, 803 (2002).
- [4] E. Constant *et al.*, *Phys. Rev. A* **56**, 3870 (1997); Y. Kobayashi *et al.*, *Opt. Lett.* **23**, 64 (1998); A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 412 (2001).
- [5] J. Itatani *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002); M. Kitzler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173904 (2002).
- [6] C. Iaconis and I. A. Walmsley, *Opt. Lett.* **23**, 792 (1998); *IEEE J. Quantum Electron.* **35**, 501 (1999).
- [7] T. C. Weinacht, J. Ahn, and P. H. Bucksbaum, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5508 (1998).
- [8] A. M. Dykhne and G. L. Yudin, *Usp. Fiz. Nauk* **121**, 157 (1977) [*Sov. Phys. Usp.* **20**, 80 (1977)]; **125**, 377 (1978) [*ibid.* **21**, 549 (1978)].
- [9] M. Lewenstein *et al.*, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- [10] J. M. Schins *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180 (1994); T. E. Glover *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2468 (1996); A. Bouhal *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 950 (1997); E. S. Toma *et al.*, *Phys. Rev. A* **62**, 061801(R) (2000).
- [11] P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001); H. G. Muller, *Appl. Phys. B* **74**, S17 (2002).

Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts

Y. Mairesse and F. Quéré

DSM-DRECAM—Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

(Received 14 April 2004; published 27 January 2005)

We describe a method for the complete temporal characterization of attosecond extreme ultraviolet (xuv) fields. An electron wave packet is generated in the continuum by photoionizing atoms with the attosecond field, and a low-frequency dressing laser pulse is used as a phase gate for frequency-resolved-optical-gating-like measurements on this wave packet. This method is valid for xuv fields of an arbitrary temporal structure, e.g., trains of nonidentical attosecond pulses. It establishes a direct connection between the main attosecond characterization techniques demonstrated experimentally so far, and considerably extends their scope, thus providing a general perspective on attosecond metrology.

DOI: 10.1103/PhysRevA.71.011401

PACS number(s): 32.80.Wr, 42.65.Ky, 42.65.Re, 41.50.+h

The generation of isolated attosecond (as) pulses [1,2] and trains of attosecond bursts [3–5] has recently been demonstrated experimentally, opening the route to the time-domain study of electronic dynamics in matter [6]. Characterizing such attosecond fields is challenging, not only due to the extremely short time scales involved and the large associated bandwidth, but also because these fields are in the extreme ultraviolet (xuv) range, where no efficient nonlinear medium is available. It is thus extremely difficult to directly apply the conventional methods of ultrafast optics. Several schemes have now been demonstrated [1–3,5] or proposed [7–11] to circumvent these problems. Most of these methods consist of converting the as pulses into continuum electron wave packets, through the photoionization of atoms, and in using the femtosecond oscillations of an infrared laser field to gain information on the temporal structure of these wave packets. However, only a few of these methods enable a complete characterization, and most of them are restricted to specific and simple temporal structures, e.g., single isolated as pulses [1,2,7–10] or trains of identical as bursts [3,4]. Moreover, no clear connection has been established yet between the main demonstrated techniques [1–3].

We describe a simple and general method allowing for the complete characterization of arbitrary as fields: frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts (FROG CRAB [12], hereafter called CRAB). Introducing this technique allows us to transpose some of the most efficient tools of the very mature field of ultrafast optics to attosecond metrology. It also merges the main techniques demonstrated so far [1–4] into a common and more general framework, thus providing a general perspective of attosecond measurements.

CRAB is inspired from frequency-resolved optical gating (FROG), a widely used technique for the full temporal characterization of visible pulses [13]. FROG consists of decomposing the pulse to be characterized in temporal slices thanks to a temporal gate $G(t)$, and then measuring the spectrum of each slice. This provides a two-dimensional set of data, called a spectrogram or FROG trace, given by

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} \right|^2, \quad (1)$$

where $E(t)$ is the field of the pulse to be characterized, and τ is the variable delay between the gate and the pulse. The gate may either be a known function of the pulse, as in most implementations of FROG, or an unrelated—and possibly unknown—function (blind FROG) [14]. Various iterative algorithms, such as the very efficient principal component generalized projections algorithm (PCGPA) [14], can then be used to extract both $E(t)$ and $G(t)$ from $S(\omega, \tau)$. The FROG technique is best understood intuitively by considering measurements performed with pure *amplitude* gates $G(t) = f(t) \in \mathcal{R}$. However, femtosecond pulses metrology shows that pure *phase* gates $G(t) = e^{i\phi(t)}$ can also be used [15].

As most other attosecond measurement techniques, CRAB is based on the photoionization of atoms by the as field, in the presence of a dressing laser field. We consider an atom with ionization potential I_p , photoionized by an xuv electric field $\mathbf{E}_X(t)$, in the presence of a low-frequency laser field $\mathbf{E}_L(t) = -\partial \mathbf{A} / \partial t$ shifted by a variable delay τ [$\mathbf{A}(t)$ being the vector potential of this laser field]. The transition amplitude to the final continuum state $|\mathbf{v}\rangle$ with momentum \mathbf{v} , is given, within the strong field approximation, by [8,9,16]

$$a(\mathbf{v}, \tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\phi(t)} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i(W + I_p)t}, \quad (2)$$

$$\phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' [\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t') + \mathbf{A}^2(t')/2]. \quad (3)$$

$\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ is the instantaneous momentum of the free electron in the laser field. $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$ is the dipole transition matrix element from the ground state to the continuum state $|\mathbf{p}\rangle$. $W = \mathbf{v}^2/2$ is the final kinetic energy of the electron.

Equations (2) and (3) show that the main effect of the laser field is to induce a temporal phase modulation $\phi(t)$ on the electron wave packet $\mathbf{d}_{\mathbf{p}} \mathbf{E}_X(t)$ generated in the continuum by the xuv field. Qualitatively, the trajectory of a photoelec-

tron from its parent ion to the spectrometer depends on its time of ionization within the laser field optical cycle [8]: the phase it accumulates along this trajectory is thus temporally modulated by the dressing field. Because of the scalar product $\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}$ in Eq. (3), the photoelectrons have to be observed in a given direction for the phase modulation to be well defined.

Different ways of using this ultrafast electron-phase modulator for the characterization of xuv fields have already been demonstrated or proposed. In the limit of a single many-laser-cycle-long xuv pulse, $\phi(t)$ corresponds to a periodic phase modulation on the photoelectron wave packet. This leads to the appearance of sidebands in the photoelectron energy spectrum [17], which have been used to characterize fs to ps xuv pulses, either by cross correlation with the envelope of fs laser pulses [17], or by FROG measurements [18,19]. In the other limit of an as xuv pulse significantly shorter than the dressing field optical period, depending on the choice of the delay τ , attosecond spectral shearing interferometry [10] or streak-camera [2,8,9] measurements can be performed. In the latter, τ is chosen in such a way that the phase modulation is quadratic in time: the electron wave packet then experiences a linear streaking in energy $dW/dt = -\partial^2 \phi / \partial t^2$, and the resulting distortion of the photoelectron spectrum provides direct information on the duration of the as pulses.

CRAB provides another, much more versatile, way of using this electron-phase modulator. Its principle can be derived from the FROG technique, by comparing the expression of $S(\omega, \tau)$ given by Eq. (1), which describes an optical FROG, and the expression of the photoelectron spectrum $|a(\mathbf{v}, \tau)|^2$ in a given observation direction, obtained from Eqs. (2) and (3). This comparison shows that, by scanning the delay τ , the dressing laser field can be used as a temporal phase gate $G(t) = e^{i\phi(t)}$ for FROG measurements on electron wave packets generated in the continuum by attosecond fields. The full characterization of these wave packets provides all the information on the temporal structure of the generating as fields.

To demonstrate that this electron phase modulator is well suited for attosecond measurements, we consider the particular case of a linearly polarized dressing laser field $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t)\cos(\omega_L t)$, long enough for the slowly varying envelope approximation to apply. $\phi(t)$ is then given by $\phi(t) = \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t)$, with

$$\begin{aligned}\phi_1(t) &= - \int_t^{+\infty} dt U_p(t), \\ \phi_2(t) &= (\sqrt{8WU_p}/\omega_L)\cos\theta\cos\omega_L t, \\ \phi_3(t) &= -(U_p/2\omega_L)\sin(2\omega_L t).\end{aligned}\quad (4)$$

$U_p(t) = E_0^2(t)/4\omega_L^2$ is the ponderomotive potential of the electron in the laser field at time t . The observation angle θ is the angle between \mathbf{v} and the laser polarization direction. $\phi_2(t)$ and $\phi_3(t)$ oscillate, respectively, at the laser field frequency and its second harmonic. Due to the fast oscillations in $\phi(t)$ and to the large amplitude of the phase modulation, this electron-phase modulator has a bandwidth $|\partial\phi/\partial t|_{\max}$ of

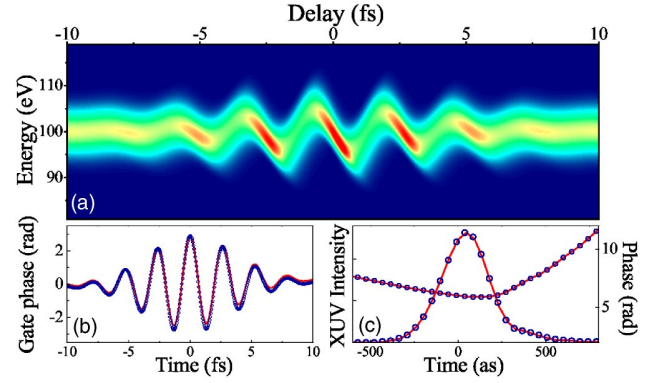


FIG. 1. (a) CRAB trace of a single 315 as pulse [full width at half maximum (FWHM) of intensity], having second- and third-order spectral phases (Fourier limit=250 as), gated by a Fourier-limited 6-fs 800 nm laser pulse, of $0.5 \text{ TW}/\text{cm}^2$ peak intensity. The electrons are collected around $\theta=0$ with an acceptance angle of $\pm 30^\circ$. (b), (c) A comparison of the exact as pulse and the laser-induced gate phase $\phi(t)$ (full line) with the corresponding reconstructions (dots) obtained from the CRAB trace after 100 iterations of the PCGPA algorithm [20]. The gate modulus $|G(t)|$ is constant and equals to 1.

5 fs^{-1} ($\approx 20 \text{ eV}$) for realistic parameters ($W=100 \text{ eV}$, $\theta=0$, $I_{\text{laser}}=10 \text{ TW}/\text{cm}^2$ at 800 nm), which makes it adequate for attosecond measurements. On the other hand, as we will show, the slow variations of all terms of $\phi(t)$ associated to the envelope $E_0(t)$ of the laser pulse, allow us to simultaneously determine the femtosecond temporal structure of trains of as pulses.

We now use Eqs. (2) and (3), and the iterative PCGPA algorithm developed for the optical blind FROG, to simulate an experiment and demonstrate different schemes of CRAB for a linearly polarized laser pulse. We first show how CRAB extends existing methods for single as pulses [1,2] and trains of as bursts [3], and finally we present the case of an as field that, as far as we know, no other existing method allows to characterize.

Figure 1(a) shows a CRAB trace calculated around the $\theta=0$ direction using Eqs. (2) and (3), for a single 315 as pulse. From a classical point of view, this trace can be understood qualitatively as resulting from the oscillations of a suddenly freed electron in the dressing laser field. Figures 1(b) and 1(c) show the as pulse, and the gate phase $\phi(t)$, retrieved from this trace using PCGPA [20], and compares them with the exact profiles. For both signals, the agreement is excellent.

We emphasize the striking similarity of the CRAB trace of Fig. 1, with Figs. 4 of [1] and [2], which provided experimental evidences of the generation of a single as pulse. Our approach provides a systematic and straightforward procedure for the full retrieval of the laser pulse and the as burst from such measurements. This procedure has many advantages which are inherited from optical FROG [13]. Due to the high redundancy of information in the CRAB trace, it is very robust against noise, and is unlikely to properly converge if experimental flaws exist, e.g., shot-to-shot variations in the as pulse temporal structure. The retrieval of the laser

pulse offers an additional opportunity to check the validity of the measurement, by comparison with the results of the standard methods for visible pulses.

For any given delay τ_0 in Fig. 1(a), the spectrum $S(\omega, \tau_0)$ can be considered as an attosecond streak-camera measurement [8], each delay corresponding to a different streaking speed: in this scheme of CRAB, the information on the temporal structure of the pulse is also obtained by streaking the electron energy. The ultimate temporal resolution is thus determined by the maximum streaking speed that can be achieved, i.e., by the maximum laser intensity that can be applied to the atoms. This leads to a limit of ≈ 70 as for $W = 100$ eV for near Fourier-limited pulses, as demonstrated in [8].

As illustrated by the results of Fig. 1, CRAB has a large angular acceptance at $\theta=0$: approximating $\phi(t)$ by the long-pulse expression Eq. (4), and given that $U_p \ll W$, $\phi_2(t)$ is the dominant term of $\phi(t)$ for all angles except $\theta \approx \pi/2$, and has a slow angular dependence around $\theta=0$. However, one specificity of $\phi_2(t)$ is that it depends on the final electron energy W . This dependence is not taken into account by the existing reconstruction algorithms, thus introducing systematic errors in the reconstructed pulses. We have checked numerically that these errors are negligible provided the bandwidth of the as pulse is small compared to its central frequency. Besides, such systematic errors do not occur at $\theta=\pi/2$, where $\phi_1(t)$ and $\phi_3(t)$ dominate, but measurements then have to be carried out with a much smaller collection angle, typically of a few degrees.

We now turn to the complete characterization of trains of as pulses using CRAB. Such trains are naturally generated by high-order harmonic generation (HHG) on gaseous targets with intense many-cycle laser pulses, and their accurate characterization is essential for their future use in attosecond pump-probe experiments. CRAB requires no specific relationship between the periods T of the train and T_ϕ of the laser-induced phase-gate oscillations. However, in the most general case, the resulting CRAB trace is complicated, which makes it difficult to determine how the temporal information is encoded in the trace. Two particular schemes enable us to get some insight into how CRAB works for trains.

The first one corresponds to $T=T_\phi$, i.e., the train and the gate oscillations have the same period. The as field generates a train of continuum electron wave packets, which experience almost identical energy streakings by the laser field. Due to the resulting temporal periodicity of the dressed train, the obtained CRAB trace is similar to the single-pulse trace of Fig. 1(a), but is now discretized along the energy axis, with a sampling step of $1/T$. Thus, in this scheme, the temporal information on each as burst is still obtained through an energy streaking, resulting in an intensity-dependent temporal resolution. This streaking now leads to the appearance of “outer” sidebands, below or above the field-free spectrum.

The second instructive scheme corresponds to $T=T_\phi/2$, i.e., the period of the train is half that of the gate oscillations. This situation is naturally encountered experimentally when the same laser pulse is used both to generate HHG in a gas and to characterize the resulting superposition of harmonics [3]. Figure 2 shows a CRAB trace obtained in this scheme,

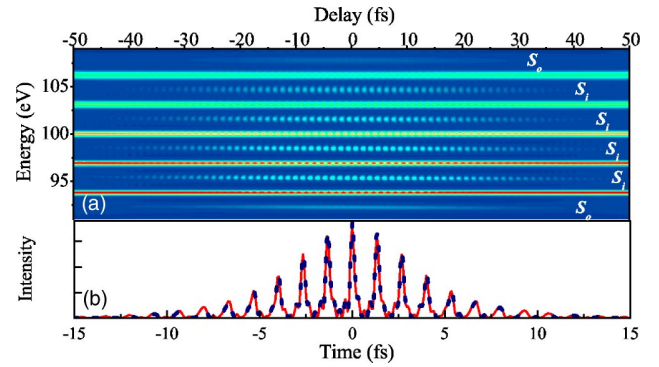


FIG. 2. (a) CRAB trace at $\theta=0$ of a 12-fs-train of nonidentical as pulses, of period $T/2=1.3$ fs, gated by a 30-fs-800 nm- ($T=2.6$ fs) laser pulse, of 0.05 TW/cm^2 peak intensity, assuming a spectrometer resolution of 100 meV. The as pulses are shorter in the center of the train (≈ 250 as), than in the edges (≈ 400 as). The outer and inner sidebands are respectively labelled S_o and S_i . (b) A comparison of the exact as train (red line) and the reconstruction (dotted blue line) obtained from the CRAB trace after 750 iterations of the PCGPA algorithm.

and the train of nonidentical pulses retrieved from this trace. Although this configuration can also be entirely analyzed in the time domain [21], it is more easily understood in the frequency domain: the information on the temporal structure of the bursts is partly obtained through the same process as in resolution of attosecond beating by interference of two-photon transitions (RABBITT [3,4,11]), which is the following. Due to the very specific ratio of T and T_ϕ , the upper first-order sideband of the harmonic n overlaps and interferes with the lower first-order sideband of the harmonic $n+1$. As the delay is scanned, these interferences lead to an oscillation of these “inner” sideband amplitudes with a period of T [Fig. 2(a)]. RABBITT measurements are performed in the perturbative intensity regime: the phase of these oscillations then provides the relative phase between neighboring harmonics, which suffices to retrieve trains of identical as bursts.

The “interferometric” version of CRAB shown in Fig. 2 extends RABBITT in several respects. (i) By scanning the delay until the two fields no longer overlap, and thus exploiting the envelope of the laser pulse in a similar way as in [18,19], trains of nonidentical pulses can now be retrieved. (ii) To obtain the reconstruction of Fig. 2(b), we not only use the amplitude of the inner sidebands [3,4], the full photoelectron spectrum is injected in the PCGPA algorithm. (iii) Using this procedure, there is no more restriction on the intensity of the dressing field. At high intensity, the information on the as pulses temporal structure is encoded both in the sideband interference pattern and a streaking effect [leading to outer sidebands, Fig. 2(a)]. Thanks to the interference effect, the temporal resolution of this scheme does not depend on the laser intensity: by taking advantage of the gaps in between the harmonics, only a small bandwidth is required for the electron phase modulator, whatever the number of harmonics involved. Measurements of trains of arbitrarily short as bursts can thus be carried out without necessarily using very high laser intensities, a major advantage over the streaking scheme previously described. From an experimental point of

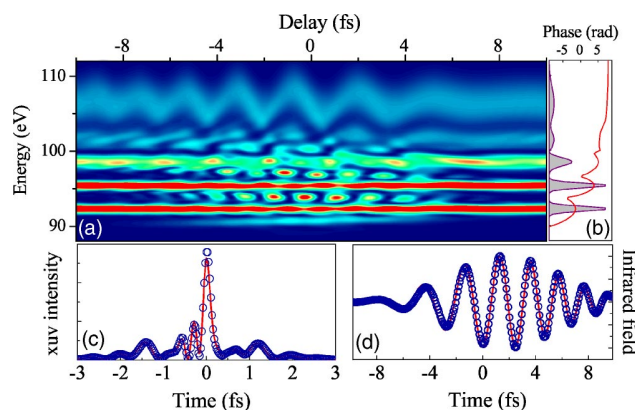


FIG. 3. (a) CRAB trace at $\theta=0$ of a complex as field, whose spectrum (shaded curve) and spectral phase (red line) are shown in panel (b). The spectrum consists of discrete peaks spaced by ≈ 3 eV in its lower part, and a continuous component in its upper part. In (c) and (d), the exact intensity profile of the as field and the laser electric field (full lines) are compared to the ones retrieved from this trace (dots) after 300 iterations of PCGPA.

view, the finite resolution of electron spectrometers can introduce systematic errors in CRAB traces of trains if the harmonics are too narrow. We have determined numerically that for an accurate retrieval, a resolution of 100 meV sets an upper limit of about 8 fs on the Fourier-limited duration of the as train.

We now illustrate the universality of CRAB by treating the case of a rather complicated as field (Fig. 3). The spectrum of this field qualitatively corresponds to what would be

obtained by selecting the end of the plateau and the cutoff of the high-harmonic spectrum generated in a gas by a few-cycle laser pulse [Fig. 3(b)]. As in HHG in gases, each harmonic peak has a different chirp, and the relative phase of these peaks does not vary linearly [Fig. 3(b)]. Figure 3(a) shows the CRAB trace obtained when an 800-nm 7-fs chirped laser pulse ($\lambda=800$ nm and $I=0.05$ TW/cm²) is used as a phase gate. The temporal intensity profile of the as field retrieved from this CRAB trace is in excellent agreement with the exact profile [Fig. 3(c)]. Based on the previous analysis of simpler CRAB traces, two main relevant features can be identified in Fig. 3(a): the overall oscillations of the continuous upper part, and the oscillating sidebands in the discrete lower part. As the energy varies, a gradual transition between these two regimes is observed. CRAB is the only existing method for the full characterization of such complex as fields. This will, for instance, allow us to study the transition regime between as trains and single as pulses generated by few-cycle laser pulses or through polarization gating [22].

In a conclusion, FROG CRAB is a general method for the complete temporal characterization of arbitrary attosecond fields, which consists of adapting the concepts of optical FROG to electron wave packets. It is simple, systematic, and robust against noise and experimental flaws. All the experimental tools are available for its implementation, thus opening the way to the routine characterization of attosecond fields.

Discussions with P.B. Corkum, C. Dorrer, J. Itatani, M. Yu. Ivanov, Ph. Martin, P. Salières, and I. A. Walmsley are gratefully acknowledged.

-
- [1] M. Hentschel *et al.*, *Nature (London)* **414**, 509 (2001).
 - [2] R. Kienberger *et al.*, *Nature (London)* **427**, 817 (2004).
 - [3] P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001).
 - [4] Y. Mairesse *et al.*, *Science* **302**, 1540 (2003).
 - [5] P. Tzallas *et al.*, *Nature (London)* **426**, 267 (2003).
 - [6] M. Drescher *et al.*, *Nature (London)* **439**, 803 (2002).
 - [7] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 412 (2001).
 - [8] J. Itatani *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002).
 - [9] M. Kitzler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173904 (2002).
 - [10] F. Quéré, J. Itatani, G. L. Yudin, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 073902 (2003).
 - [11] H. G. Muller, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **74**, S17 (2002).
 - [12] <http://www.dpi.qld.gov.au/fishweb/2455.html>
 - [13] *Frequency-Resolved Optical Gating*, edited by R. Trebino (Kluwer Academic, Boston, 2000).
 - [14] D. Kane, *IEEE J. Quantum Electron.* **35**, 421 (1999).
 - [15] M. Thomson, J. Dudley, L. Barry, and J. Harvey, *Opt. Lett.* **23**, 1585 (1998).
 - [16] M. Lewenstein *et al.*, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
 - [17] J. M. Schins *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180 (1994).
 - [18] J. Norin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 193901 (2002).
 - [19] T. Sekikawa, T. Kanai, and S. Watanabe, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 103902 (2003).
 - [20] The iterative retrievals can be viewed at <http://www-drecam.cea.fr/spam/themes/atto>
 - [21] F. Quéré, Y. Mairesse, and J. Itatani, *J. Mod. Opt.* (to be published).
 - [22] P. Corkum, N. Burnett, and M. Ivanov, *Opt. Lett.* **19**, 1870 (1994).

Temporal characterization of attosecond XUV fields

F. QUÉRÉ†, Y. MAIRESSE† and J. ITATANI‡

† DSM-DRECAM-Service des Photons, Atomes et Molécules,
CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

‡ Steacie Institute for Molecular Sciences, National Research
Council of Canada, Ottawa, Ontario, Canada K1A 0R6

(Received 25 June 2004; revision received 19 August 2004)

Abstract. Building on the concepts developed for femtosecond metrology, this paper proposes a unified perspective of different techniques for the temporal characterization of attosecond XUV fields. These techniques rely on the conversion of the field to be characterized into a continuum electron wavepacket replica, through single-photon photoionization of an atom. A dressing laser field is then used as an ultrafast phase modulator on this wavepacket, for instance allowing one to shear or to streak it in energy. We present different ways of using this time-nonstationary filter with a multi-PHz bandwidth to characterize attosecond electron wavepackets, and hence attosecond fields.

1. Introduction

Accessing the attosecond time-scale is an important challenge for ultrafast science, since this is the relevant scale for the dynamics of many electronic processes in matter. Two paths are presently being explored for time-resolved measurements with attosecond resolution, using intense femtosecond lasers.

The first one consists of using high-harmonic generation (HHG) in gases to produce attosecond extreme ultraviolet (XUV) pulses, which can be used to trigger or to probe an ultrafast process. This approach has already been successfully used to follow the Auger decay of an excited ion, occurring on a few femtoseconds time-scale [1], using a scheme with potential attosecond resolution.

In the second path, the correlations between several particles are exploited to resolve attosecond processes without using attosecond light pulses. This concept has been demonstrated by probing the fast nuclear dynamics of a D_2^+ molecule, using attosecond electron pulses correlated with the nuclear wavepacket [2, 3]. These correlated wavepackets were obtained by strong-field ionization of the D_2 molecules by a *femtosecond* infrared laser pulse.

Following the first of these two paths requires methods for accurate temporal characterization of attosecond XUV fields, a problem that has long hindered the development of attosecond science. This obstacle has now been surmounted: during the past few years, several schemes have been demonstrated [4–9] or

proposed [10] to determine the duration of attosecond pulses, or even to fully characterize their temporal structure [11–13]. In this paper, we review several of these schemes, with the main objective of introducing a unified perspective of attosecond metrology, which is directly inspired from femtosecond metrology, although it represents a radical departure from conventional optics.

Today, femtosecond metrology allows us to completely characterize the temporal structure of ultrashort light pulses in the visible or near-visible range. Such a complete characterization of ultrashort light pulses with a slow, integrating detector, requires the use of at least one time-nonstationary filter [14], e.g. an amplitude gate, with a bandwidth which is typically a fraction of that of the field to be characterized. Because of the large bandwidth required, the unknown pulse itself is generally turned into a time-nonstationary filter, through the use of a nonlinear effect. However, nonlinear effects are in principle absolutely not required for ultrashort pulses metrology.

Because attosecond light pulses are in the XUV range and have only reached moderate intensities so far, using nonlinear effects for their characterization is challenging [9]. Most attosecond measurement methods therefore rely on a different approach (figure 1). Attosecond XUV fields can efficiently ionize atoms by single photon absorption. This ionization generates an attosecond electron wavepacket in the continuum, which, far from any resonance, is a replica of the attosecond field: the phase and amplitude of the XUV field are transferred to the photoelectron wavepacket. Direct information on temporal structure of this field can thus be obtained by characterizing this wavepacket, a problem which is formally analogue to the characterization of ultrashort light pulses. To this end, near-infrared or visible laser fields constitute ideal time-nonstationary filters: as we will demonstrate in the first part of this paper, such a dressing laser field essentially acts as an ultrafast phase modulator on the electron wavepacket. In the second part, we will show how this well-defined and controllable modulator enables us to transpose techniques used for femtosecond pulses to the characterization of attosecond fields, using the electron wavepacket as an intermediate tool.

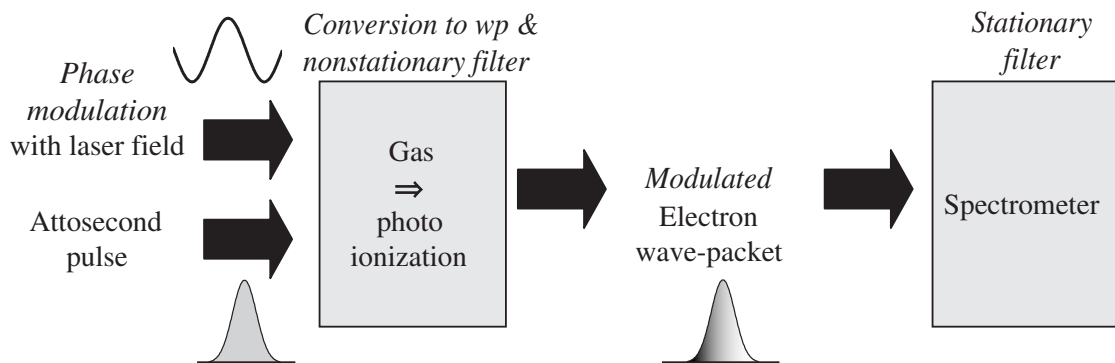


Figure 1. General scheme of an attosecond metrology experiment. The attosecond field is first converted into a continuum electron wavepacket, through single photon photoionization. This photoionization occurs in the presence of an intense optical light pulse, which acts as a time-nonstationary phase filter on the electron wavepacket. A spectrometer then measures the energy spectrum of this modulated electron wavepacket.

2. Theory of atomic XUV photoionization in a laser field

We first analyse the connection between an attosecond XUV field and the electron wavepacket it generates in the continuum when ionizing an atom. We then study the effect of a low-frequency laser field on the energy spectrum of this wavepacket. To this end, we first present a quantum model, which we use to connect this process with some concepts used in femtosecond metrology. We then detail a semiclassical model [15, 16] and show that it provides an intuitive understanding of the quantum model.

2.1. Electron wavepacket replica of an attosecond field

We consider the ionization of an atom by an attosecond field alone and use the single active electron approximation. According to first-order perturbation theory, at times large enough for the attosecond field to vanish, the transition amplitude $a_{\mathbf{v}}$ from the ground state to the final continuum state $|\mathbf{v}\rangle$ with momentum \mathbf{v} , is given by

$$a_{\mathbf{v}} = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}_{\mathbf{v}} \mathbf{E}_X(t) \exp[i(W + I_p)t], \quad (1)$$

where $W = \mathbf{v}^2/2$ is the energy of the final continuum state. $\mathbf{E}_X(t)$ is the XUV electric field, $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$ is the dipole transition matrix element from the ground state to the continuum state $|\mathbf{v}\rangle$ and I_p is the ionization potential of the atom. Note that atomic units are used throughout the paper.

Equation (1) gives the connection between an attosecond field and the electron wavepacket it generates in the continuum when ionizing an atom. It shows that the photoelectron spectrum $a_{\mathbf{v}}$ is directly related to the attosecond field spectrum, both in phase and amplitude.

The two spectra might differ in amplitude if $|\mathbf{d}_{\mathbf{v}}|$ depends on \mathbf{v} . The ionization cross-section is generally well known, which allows one to correct for this dependence. Might it not be the case, the attosecond field spectral amplitude can be measured independently, using an XUV spectrometer.

The two spectra might differ in phase because of a possible phase dependence of $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$ on \mathbf{v} , which can for instance be expected to occur near resonances in the continuum. If this phase dependence is negligible, or is known either from theory or experiment, the spectral phase of the attosecond pulse can be directly deduced from the spectral phase of the electron wavepacket. Due to the limited bandwidth (\sim a few eV) of the attosecond fields generated until now, this correction has always been neglected so far.

With these restrictions in mind, the electron wavepacket can be viewed as a replica of the attosecond field that ionizes the atom. Its full characterization thus provides all the information on the temporal structure of the attosecond field, provided the response of the atom used as a converter is known. We now turn to the effect of a low-frequency laser field on the photoelectron spectrum.

2.2. SFA quantum model

In the case of XUV photoionization in the presence of a laser field, we use the strong field approximation (SFA)[17] in addition to the single active electron approximation. It consists of neglecting the effect of the ionic potential on the electron motion after ionization. This approximation has been shown to describe remarkably well the photoionization of atoms by a low-frequency laser field alone,

provided this field is strong enough to dominate the ionic potential in the continuum. However, when the photoionization is induced by an XUV field of central frequency Ω_X , requiring $\Omega_X \gg I_p$ already ensures that the ionic potential can be neglected for continuum states. In this regime, the conditions on the laser field intensity are therefore much less stringent and, despite its name, the SFA approximation can be expected to be satisfactory even for moderate laser intensities.

Within these approximations, once both the attosecond field and the laser field have vanished, the transition amplitude $a_{\mathbf{v}}(\tau)$ to the final continuum state $|\mathbf{v}\rangle$ with momentum \mathbf{v} , for a delay τ between the two fields, is given by

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) \exp \left\{ i \left[I_p t - \int_t^{+\infty} dt' \mathbf{p}^2(t')/2 \right] \right\}. \quad (2)$$

$\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ is the instantaneous momentum of the free electron in the laser field, $\mathbf{A}(t)$ being the vector potential of this field in the Coulomb gauge, such that $\mathbf{E}_L(t) = -\partial \mathbf{A}/\partial t$. Note that if there is no laser field, this equation reduces to first-order perturbation theory (equation (1)) with respect to the XUV field.

This equation can be formally derived from the Schrödinger equation using SFA, but it also has a very intuitive interpretation. $a_{\mathbf{v}}$ is the sum of the probability amplitudes of all electron trajectories leading to the same final velocity \mathbf{v} . The integral on t in equation (2) thus accounts for the fact that the XUV field can inject the electron in the continuum at any time t , with a probability amplitude equal to the instantaneous XUV field amplitude, multiplied by the dipole transition matrix element that corresponds to the momentum just after ionization. Knowing that the velocity is \mathbf{v} when the laser field vanishes ($\mathbf{A}(t) = 0$), this momentum has to be $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ owing to canonical momentum conservation of the electron in the laser field. The exponential in the integral accounts for the phase of this process, which is the sum of the phase $I_p t$ accumulated in the fundamental state until time t , and of the phase subsequently accumulated in the continuum. Within SFA, this last term is the Volkov phase, i.e. the integral of the instantaneous energy of a free electron in the laser field, $\mathbf{p}^2(t')/2$, from the ionization time t to the observation time.

To understand attosecond measurement techniques, a very useful form of this equation is obtained by rearranging the different terms of the integral in the exponential of equation (2):

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp[i\phi(t)] \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) \exp[i(W + I_p)t], \quad (3)$$

$$\phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' (\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t') + \mathbf{A}^2(t')/2). \quad (4)$$

Comparing equation (1) and equations (3) and (4) shows that the main effect of the laser field is to induce a temporal phase modulation $\phi(t)$ on the electron wavepacket generated in the continuum by the XUV field. Because of the scalar product $\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}$ in equation (4), the photoelectrons have to be observed in a given direction for the phase modulation to be well defined [4, 5, 7, 11]. With these conditions, the laser field acts on electron wavepackets just as a conventional phase modulator used in optics acts on light pulses: we therefore consider it as an *ultrafast electron phase modulator*.

In this paper, we will concentrate on the use of linearly polarized laser fields. A simple expression of $\phi(t)$ is then obtained if the envelope \mathbf{E}_0 of the laser field $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t) \cos(\omega_L t)$ is long enough to apply the slowly-varying envelope approximation, so that $\mathbf{A}(t) = -\mathbf{E}_0(t)/\omega_L \sin(\omega_L t)$. One then gets

$$\begin{aligned}\phi(t) &= \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t), \\ \phi_1(t) &= -\int_t^{+\infty} dt U_p(t), \\ \phi_2(t) &= ([8WU_p(t)]^{1/2}/\omega_L) \cos \theta \cos \omega_L t, \\ \phi_3(t) &= -(U_p(t)/2\omega_L) \sin(2\omega_L t).\end{aligned}\tag{5}$$

$U_p(t) = E_0^2(t)/4\omega_L^2$ is the ponderomotive potential of the electron in the laser field at time t . The observation angle θ is the angle between \mathbf{v} and the laser polarization direction. $\phi_1(t)$ varies slowly in time, i.e. on the time-scale of the laser pulse envelope, while $\phi_2(t)$ and $\phi_3(t)$ oscillate at the laser field frequency and its second harmonic, respectively. Figure 2 illustrates the typical temporal dependence of $\phi(t)$ at different observation angles. We emphasize that around $\theta = 0$, the amplitude $\Delta\phi$ of the phase modulation reaches large values ($\Delta\phi > 2\pi$) even at moderate laser intensities, due to the $W^{1/2}$ factor in $\phi_2(t)$.

By providing a direct connection with the concepts used in femtosecond metrology, this quantum model constitutes the ideal framework to conceive and analyse attosecond measurement techniques, as we will see in part 3. However, for a more intuitive picture of XUV photoionization in the presence of a laser field, we have to turn to a semiclassical treatment of this process.

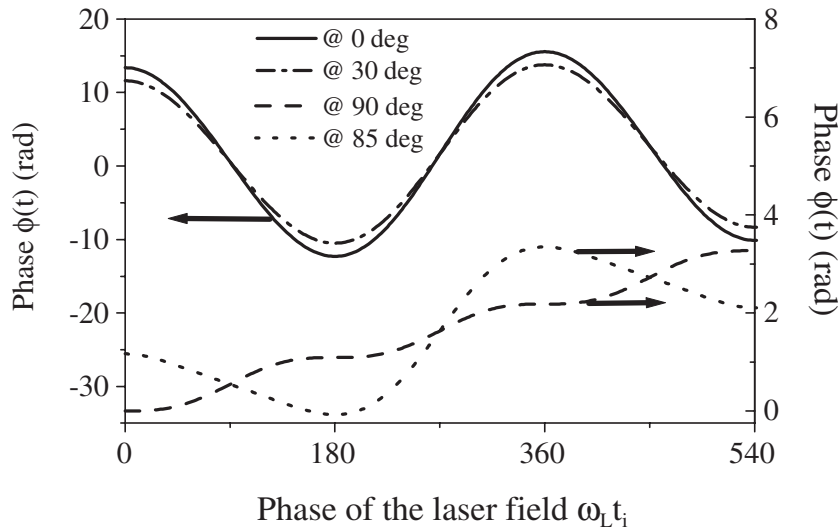


Figure 2. Phase modulation $\phi(t)$ induced on the electron wavepacket, in different observation directions θ , by a linearly polarized 800 nm laser field of 9 TW cm^{-2} intensity ($U_p \approx 0.54 \text{ eV}$), for a final electron energy $W = 100 \text{ eV}$. Note the different vertical scales used for the different curves (see arrows). At $\theta = 0$ and 30° , a phase modulation of large amplitude is induced even at this moderate laser intensity.

2.3. Semiclassical model

Physically, the large difference in frequencies between the XUV pulse and the laser pulse naturally divides the two-colour photoionization process into two steps: absorption of an XUV photon followed by acceleration in the laser field [18, 19]. Classical mechanics can be used to describe the second step [15, 16].

We consider an electron ejected in the continuum by the XUV field at time t_i , with an initial kinetic energy $W_0 = v_0^2/2 = \Omega_X - I_p$, where \mathbf{v}_0 is the initial velocity. Assuming $\Omega_X \gg I_p$, we neglect the influence of the ionic potential on the electron motion in the continuum. Using classical mechanics, the time-dependent momentum $\mathbf{p}(t)$ in the continuum is then given by

$$\mathbf{p}(t) = \mathbf{A}(t) + [\mathbf{v}_0 - \mathbf{A}(t_i)]. \quad (6)$$

The temporal evolution of $|\mathbf{p}(t)|$ is illustrated on figure 3. The first term on the right-hand side describes the electron quiver motion in the laser field (oscillations in figure 3) and goes to zero as the laser pulse ends. The second term in brackets is determined by the initial condition $\mathbf{p}(t_i) = \mathbf{v}_0$ at the time of ionization. This constant term is the final drift velocity \mathbf{v} after the laser pulse, which is measured experimentally. It differs from the velocity just after ionization \mathbf{v}_0 by $-\mathbf{A}(t_i)$.

The effect of the laser field on the drift velocity can be visualized by plotting $|\mathbf{v}|$ as a function of the observation angle θ in polar coordinates [4, 5, 20] (figure 4, left panel). In the absence of the laser field, the electron final velocity is independent of θ , and this distribution is a circle of radius $|\mathbf{v}_0|$ centred on $|\mathbf{v}| = 0$ (dashed circle). In the presence of the laser field, for a given t_i , this distribution remains a circle of the same radius, but its centre is now displaced from $|\mathbf{v}| = 0$ by $-\mathbf{A}(t_i)$ (full line circle). In a linearly polarized laser field, this circle thus oscillates back and forth along the polarization axis as t_i varies, while it experiences a circular motion around $|\mathbf{v}| = 0$ for circular polarization. This representation shows that the laser

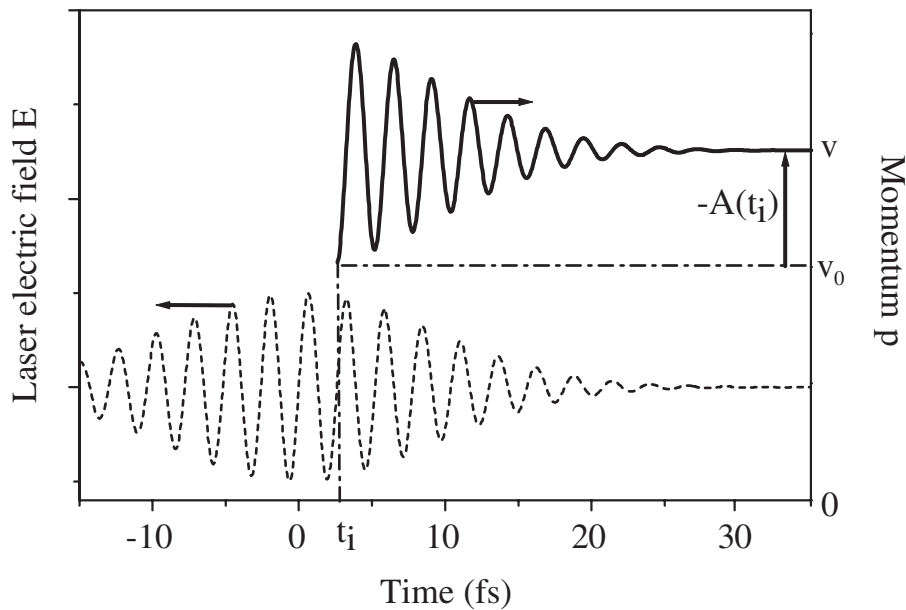


Figure 3. Temporal evolution of the momentum amplitude $|\mathbf{p}(t)|$ of an electron injected into the continuum in the presence of an 800 nm linearly polarized laser field, at a time t_i such that the laser electric field (dashed line) is 0. The initial electron velocity \mathbf{v}_0 was assumed to be parallel to the laser polarization.

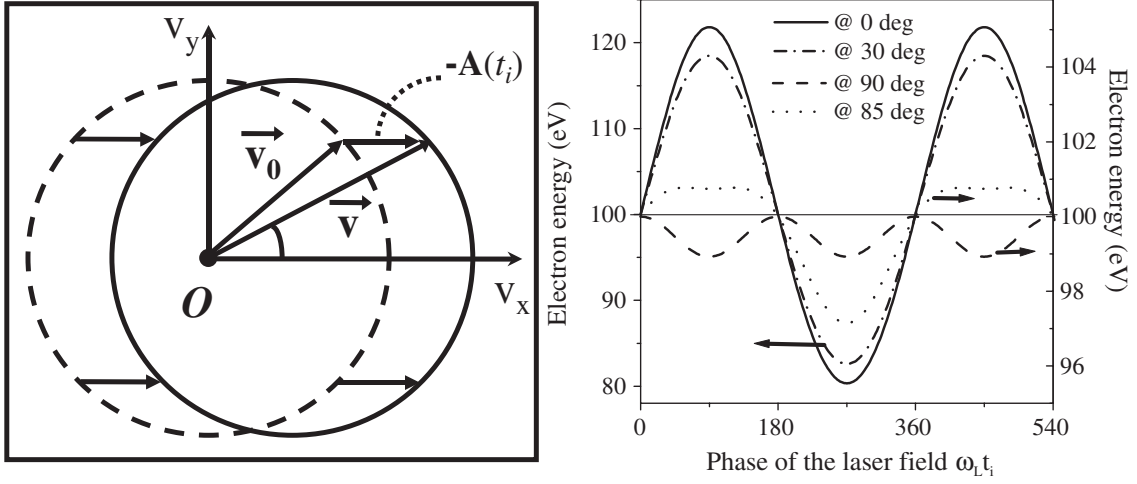


Figure 4. Right panel: drift kinetic energy W of a photoelectron as a function of its ionization phase $\omega_L t_i$, for four observation angles θ , for the same set of parameters as in figure 2 (linearly polarized dressing field, $\lambda = 800$ nm, $I = 9$ TW cm $^{-2}$, $U_p \approx 0.54$ eV, with $W_0 = \Omega_X - I_p = 100$ eV). Note the two different energy scales used. These curves can be viewed as resulting from the oscillation with $\omega_L t_i$ of the velocity circle (left panel) along the laser polarization direction of the laser field.

field generally does not only change the electron final kinetic energy, but also deflects it from its initial propagation direction. For a linearly-polarized laser field, this deflection effect is maximum at $\pi/2$ from the laser polarization, while the induced energy change is maximum at $\theta = 0$.

The drift kinetic energy $W = \mathbf{v}^2/2$ is obtained by solving the second-order polynomial equation $\mathbf{v}_0^2 = (\mathbf{v} + \mathbf{A}(t_i))^2$, which leads, for a linearly polarized laser field and in the slowly-varying envelope approximation, to

$$W = W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2 \omega_L t_i \pm \alpha (8W_0 U_p)^{1/2} \cos \theta \sin \omega_L t_i, \quad (7)$$

$$\alpha = \{1 - (2U_p/W_0) \sin^2 \theta \sin^2 \omega_L t_i\}^{1/2}.$$

As before, θ is the observation angle. For $U_p < W_0/2$, only the positive sign in equation (7) has a physical meaning. This equation shows how the energy change $\delta W = W - W_0$ induced by the laser field varies with the observation angle θ and the ionization time t_i . In figure 4 (right panel), W is plotted as a function of $\omega_L t_i$ for different observation angles θ . According to this model, the laser field leads to a periodic modulation of the drift kinetic energy of the electrons ejected in the continuum by the attosecond field. This idea is essential for a qualitative understanding of most attosecond measurement techniques.

2.4. Connection between quantum and semi-classical models

The SFA quantum model and the semiclassical model are closely related. Their connection can be analysed formally by using the stationary phase method to integrate the first integral in equation (2) [6]. More qualitatively, if the XUV pulse is short compared to the laser field period, a linear expansion of the phase modulation $\phi(t)$ with respect to time can be used in equations (3)–(5). Physically, a linear phase modulation on the electron wavepacket leads to a shift of its spectrum, as in the case of optical pulses. This shift is given by $\delta W = W - W_0 = -\partial\phi/\partial t$. Solving this equation for W leads to the same expression as in

equation (7). In other words, the energy modulation $W(t)$ (figure 4), given by the semi-classical model, and the phase modulation $\phi(t)$ (figure 2), given by the SFA quantum model, are simply related by a time derivation.

The two models are thus strictly equivalent in the limit of XUV pulses much shorter than the laser period. The semiclassical model provides the intuitive basis to understand the quantum model. It shows that the classical trajectory of a photoelectron from its parent ion to the detector depends on its time of ionization within the laser field optical cycle (figure 3): from a quantum point of view, the phase accumulated along the trajectory is thus temporally modulated by the dressing field.

To provide further insight into the connection between the two models, we define the Wigner distribution $Y_\theta(t, W)$ of the photoelectron wavepacket in a given observation direction θ as

$$Y_\theta(t, W) = \frac{1}{2\pi} \int dE a_\theta^*(W - E/2) \exp(-iEt) a_\theta(W + E/2), \quad (8)$$

where $a_\theta(W) = a_{\mathbf{v}}$ are the transition amplitudes given by equation (2). This is a particular case of time–frequency distribution [21] describing the electron wavepacket. Comparing the Wigner distributions obtained with and without the dressing laser field enables one to visualize the effect of this field on the photoelectron wavepacket.

This is illustrated in figure 5, for two XUV pulses, the first one slightly shorter than the optical period of an 800 nm laser field (2.6 fs), and the second one slightly longer. These pulses are Fourier-transform limited: their Wigner distributions in the absence of the dressing field therefore look like horizontal ellipses (figures 5 (a)–(c)).

In the central part of the shorter pulse, the dressing field induces a positive chirp on the electron wavepacket (figure 5 (b)). On the edges, the sign of the chirp changes. As expected from the previous discussion, this behaviour is qualitatively reproduced by the $W(t)$ curve provided by the semiclassical model (full line in figure 5 (b)).

What misses in the semiclassical model, compared to the quantum model, are the interferences, in the spectral domain, between parts of the wavepacket emitted at different times but having the same final energy. Since the laser field induces a periodic energy modulation on the electron wavepacket, such interferences almost unavoidably occur for XUV fields comparable or longer than the laser optical period, e.g. fs trains of attosecond pulses or fs XUV pulses. Consequently, this regime cannot be quantitatively described by the semi-classical model, although much of the underlying physics remains the same (figure 5 (d)).

These interferences lead to modulations in the photoelectron spectrum, and appear as usual [21] as ‘islands’ in the Wigner distribution. As the XUV pulse gets longer, they eventually lead to the appearance of well-separated sidebands in the photoelectron spectrum [22] (right panel in figure 5 (d)), just as a periodic modulation applied on a light pulse induces satellites in its spectrum. These sidebands have been used to cross-correlate ultrashort (ps to fs) XUV pulses with the envelope of intense femtosecond laser pulses [23]. We note that in this regime, the slowly-varying phase term $\phi_1(t)$ in equation (5) is responsible for the ponderomotive shift [24] of the peaks in the photoelectron spectrum.

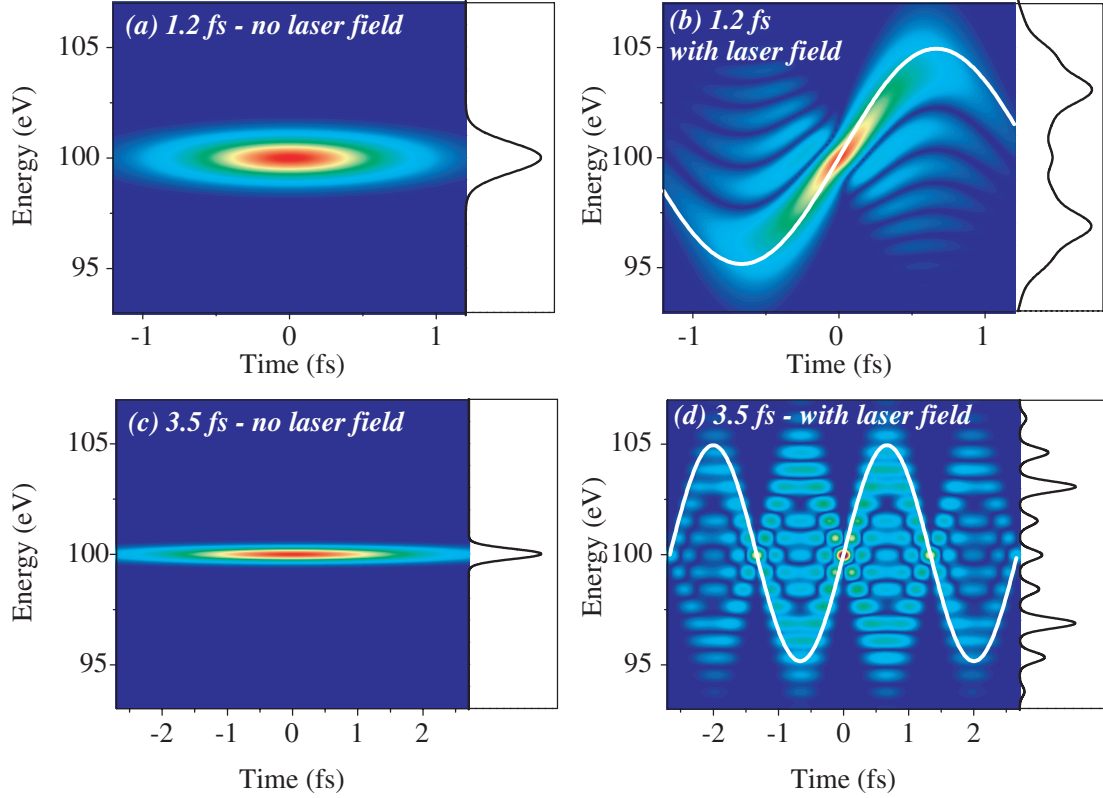


Figure 5. Wigner distributions of the electron wavepacket in the $\theta = 0$ direction, for two Fourier-limited pulses, with and without the laser field. The panels on the right show the photoelectron energy spectrum (marginal of the Wigner distribution). \mathbf{d}_v was assumed to be constant for this calculation. The Wigner distributions in (a) and (c) are therefore identical to that of the attosecond XUV pulses (1.2 fs FWHM in (a)–(b), 3.5 fs in (c)–(d), with $\Omega_X - I_p = 100$ eV). The laser field has an intensity of 0.5 TW cm^{-2} ($\lambda = 800 \text{ nm}$, $U_p = 0.03 \text{ eV}$), and its phase is such that the electric field is maximum at the maximum of the XUV pulse. The full lines in (b) and (d) show the photoelectron final energy W as a function of t_i , as deduced from the semiclassical model.

3. Attosecond measurement methods

We have shown that for electrons observed in a given direction relative to the laser polarization, a dressing low-frequency laser field essentially acts as an ultrafast phase modulator on the electron wavepacket. Analysing the classical trajectories of the electrons after ionization reveals the physics underlying this phase modulation.

In this part of the paper, we first discuss the general properties of this modulator for a linearly polarized laser field, and show why it is an adequate tool for attosecond metrology. We then describe how it enables us to transpose some of the techniques used for the characterization of visible femtosecond pulses to attosecond electron wavepackets, and hence to attosecond XUV fields.

3.1. General properties of the electron phase modulator

In optical pulses metrology, time-nonstationary *phase* filters, such as fast electro-optic phase modulators, enable a variety of powerful techniques for the complete temporal characterization of ultrashort light pulses, such as SPIDER or FROG [14, 25–27]. Amplitude filters are thus not absolutely necessary, although

they can also be used as a nonstationary filter and might at first sight appear to be more adequate and intuitive [28].

For attosecond metrology, this suggests that the dressing laser field might provide an adequate time-nonstationary phase filter for the characterization of electron wavepackets generated in the continuum by attosecond fields. To this end, an essential requirement is that this filter should be fast enough: in practical terms, its bandwidth should be a significant fraction of that of the attosecond field to be characterized, which will typically range from a few eV to several tens of eV. The bandwidth of this filter can be defined as the maximum value in time of $|\partial\phi/\partial t|$. Following the semiclassical model, this corresponds to the maximum energy shift of the photoelectron spectrum that is induced by the laser field. Using the long laser pulse expression of $\phi(t)$ (equation (5)), this quantity is easily calculated, and is plotted as a function of the laser intensity in figure 6, for two observation angles, 0 and $\pi/2$.

The bandwidth obviously increases with the laser intensity. Due to the fast oscillations in $\phi(t)$ and to the large amplitude of the phase modulation (figure 2), it reaches several tens of eV at $\theta = 0$ and several eV at $\theta = \pi/2$, for laser intensities of a few $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$. This multi-PHz bandwidth makes near-visible laser fields ideal nonstationary filters for attosecond measurement. The temporal resolution that can be achieved for a given bandwidth of the modulator depends on the specific measurement technique that is implemented. We note that, in parallel to the fast oscillations of $\phi(t)$, the envelope of the laser pulse also leads to a slow temporal evolution, which allows us to determine the femtosecond temporal structure of trains of *as* pulses [13], as we shall see later (3.5.).

The filter bandwidth is not the only relevant criterion for the choice of the experimental conditions and, in particular, of the observation angle. From an experimental point of view, the angular acceptance of the measurement is also an

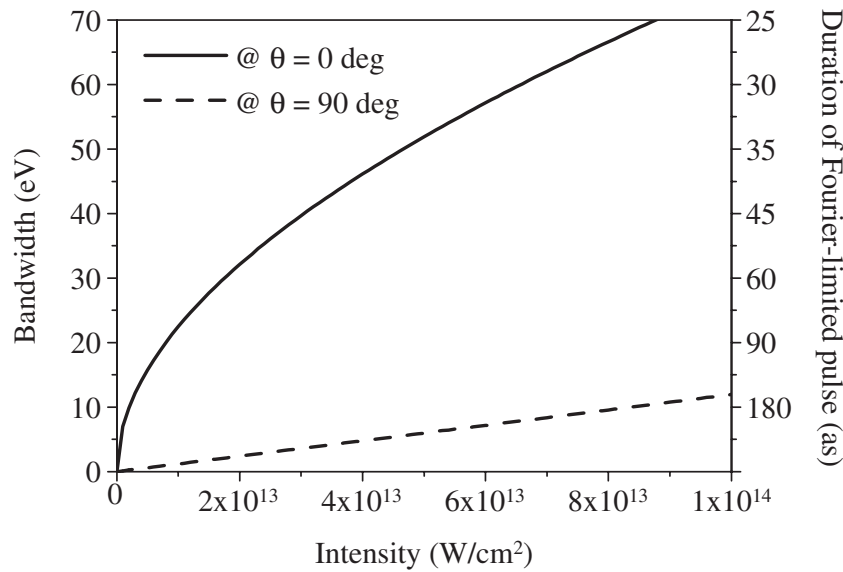


Figure 6. Bandwidth $\Delta E = |\partial\phi/\partial t|_{\max}$ of the electron phase modulator as a function of the intensity of an 800 nm laser field, for $W = 100 \text{ eV}$. The vertical scale on the right shows the duration $\Delta t \propto 1/\Delta E$ of a Fourier-limited light pulse of the same bandwidth. This duration provides a *rough* estimate of the temporal resolution that can be achieved for a given bandwidth of the modulator.

essential parameter, as it will to a large extent determine the magnitude of the available electron signal.

In most practical situations, $U_p \ll W$, so that, going back to equation (5), $\phi_2(t)$ predominates over $\phi_1(t)$ and $\phi_3(t)$ for almost all angles except $\theta \approx \pi/2$. As a result, $\phi(t)$ varies as $\cos \theta$ over a large angular range and thus has a slow variation around $\theta = 0$. In contrast, it strongly varies with θ around $\pi/2$, as $\phi_1(t)$ and $\phi_3(t)$ dominate only in a restricted angular range around this direction. These features clearly appear on figure 2.

Measurements around $\theta = 0$ can thus be performed with a large angular acceptance (typically up to $\pm 40^\circ$ [11, 13]), for which the exact value depends on the relative magnitudes of U_p and W . However, one specificity of the $\phi_2(t)$ term, which dominates in this angular range, is that it depends on the final electron energy W . The phase modulation experienced by an electron wavepacket is hence not homogenous across its spectrum. All measurement methods presented in this paper, and more generally most methods used in femtosecond metrology, assume a phase modulation that is independent of energy. This dependence will thus generally introduce systematic errors in the retrieved attosecond pulse if it has a large bandwidth ($\Delta W \approx W$). Such systematic errors might in some cases be corrected for. They never occur at $\theta = \pi/2$, where $\phi_1(t)$ and $\phi_3(t)$ dominate, but measurements then have to be carried out with a much smaller collection angle (typically a few degrees).

We now turn to the different ways of using this time-nonstationary filter for the characterization of attosecond fields.

Remark: We note that in some cases, the dependence of $|\mathbf{d}_v|$ on either the amplitude of \mathbf{v} or its direction might not be negligible. According to equation (3), the laser field then also induces a temporal amplitude modulation on the electron wavepacket, through the temporal dependence of $\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$ in $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}$. Qualitatively, this is again due to the fact that the final velocity magnitude and direction are different from the ones just after ionization, and depend on the ionization phase. This effect could in principle be exploited to obtain a time-nonstationary *amplitude* filter for attosecond measurements. However, this interesting possibility has hardly been explored so far and will not be considered here.

3.2. Attosecond SPIDER [11]

Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction (SPIDER) [29] is one method for the complete characterization of ultrashort light pulses in the visible. SPIDER measures the relative phases of the different frequency components. To this end, a frequency shear $\Delta\Omega$ is induced between two replicas of the light pulse to be characterized, delayed by a time Δt . These two frequency-shifted twin-pulses interfere in the frequency domain, and because of the time delay Δt , the total power spectrum has fringes. The frequency shear $\Delta\Omega$ causes a modulation to the positions of these fringes, which provides the information required to retrieve the slowly-varying spectral phase.

SPIDER can be adapted to short attosecond pulses, using continuum electron wavepackets as an intermediate tool (figure 7, left graphs). Two identical and time-delayed electron wavepackets can be produced by ionizing an atom with two time-delayed replicas of the attosecond pulse to be characterized (figure 7).

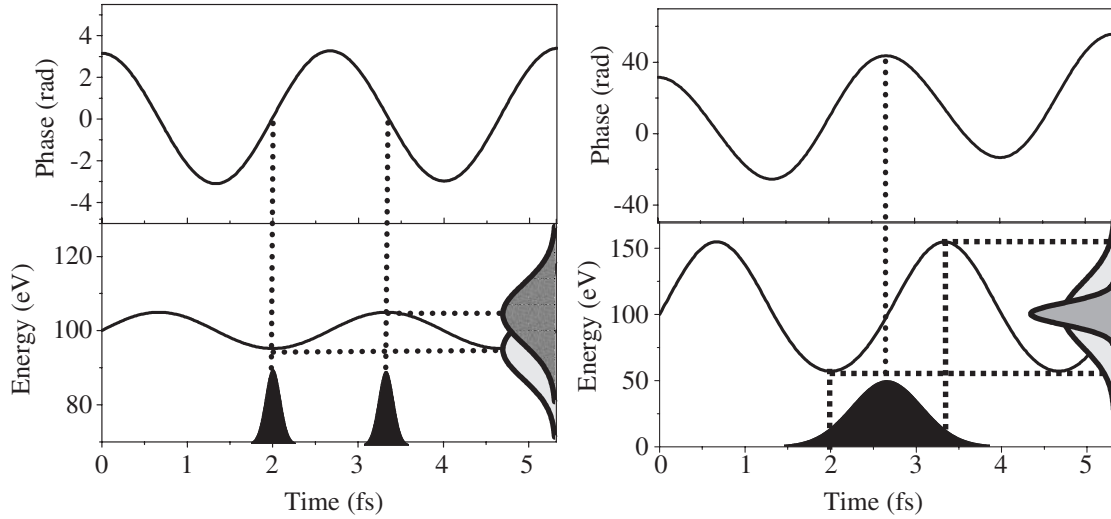


Figure 7. Two different ways of synchronizing the electron phase modulator with attosecond pulses, for attosecond measurements. The black Gaussians sketch the pulse temporal envelope, while the grey ones correspond to the photoelectron energy spectrum. Left graph: configuration used for a SPIDER measurement. The $\phi(t)$ and $W(t)$ curves correspond to $\theta = 0$, $W = 100$ eV, $I = 0.5$ TW cm $^{-2}$ and $\lambda = 800$ nm. Right graph: synchronization used for streak-camera measurements (same conditions, except that $I = 50$ TW cm $^{-2}$). The dark and light grey Gaussians respectively correspond to the unstreaked and streaked spectra. Note the different phase and energy scales used on the two sets of graphs.

Producing a time-delayed duplicate of an XUV pulse with a large spectral bandwidth is experimentally difficult, but it could be achieved by using a dispersionless Michelson interferometer [30] or the zeroth-order reflection of a laminar grating [11]. By choosing appropriate observation angle and ionization phases, a dressing laser field then induces the required energy shear ΔW between these two wavepackets. We emphasize that a controlled spectral shifting has already been demonstrated experimentally for a single electron wavepacket [31].

It is essential to avoid inducing spectral distortions when shearing the twin wavepackets in energy: this implies that the attosecond pulse has to be significantly shorter than the optical period of the dressing laser field. The phase modulation $\phi(t)$ can then be approximated by a linear expansion with respect to time. This leads to a shift $\delta W = -\partial\phi/\partial t$ of the photoelectron spectrum given by equation (7).

The delay τ with the dressing field and the time separation Δt between the twin pulses have to be chosen so that the two wavepackets experience different energy shifts δW (figure 7). Besides, the linear expansion of $\phi(t)$ is most accurate, and the distortion of the spectrum is the weakest, when $\partial^2\phi/\partial t^2 = \partial\delta W/\partial t = 0$ at $t = \tau$ and $t = \tau + \Delta t$. These two conditions determine the most adequate arrival times for the two attosecond pulses with respect to the laser field oscillation. For example, at $\theta = \pi/2$, this leads to $\omega_L\tau = 0$ and $\omega_L\Delta t = 2\pi(n/2 + 1/4)$, with a corresponding energy shear of $2U_p$, while at $\theta = 0$, $\omega_L\tau = \pm\pi/2$ and $\omega_L\Delta t = 2\pi(n + 1/2)$, with an energy shear of $(32W_0U_p)^{1/2}$.

At angles other than $\theta \approx \pi/2$, a residual distortion of the photoelectron spectrum always occurs, because of the dependence of $\phi_2(t)$, and hence δW , on W . This can lead to systematic errors in the retrieved phase. However, such errors can easily be corrected by modifying the conventional SPIDER reconstruction algorithm, to take into account this predictable distortion of the spectrum.

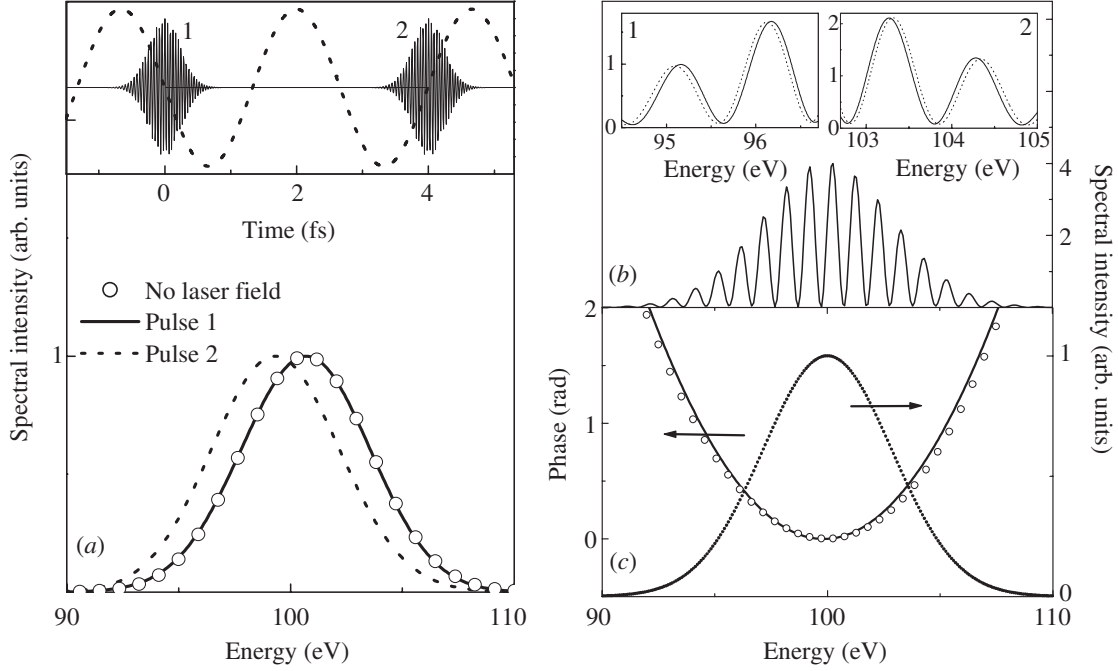


Figure 8. (a) Photoelectron spectra at $\theta = 0$, produced by each of the two XUV pulses shown in the top inset (400 as chirped pulses, 6.5 eV spectral bandwidth, $\Omega_X - I_p = 100$ eV) in the presence of a laser field ($\lambda = 800$ nm, $I = 10^{-2}$ TW cm $^{-2}$, energy shear $\Delta W \approx 1.4$ eV). The open circles show the spectrum obtained in the absence of the laser field (shifted in energy for comparison with the sheared spectrum). The dashed line in the inset shows the laser electric field. (b) Photoelectron spectrum obtained when both pulses successively excite the atom in the laser field. Insets 1 and 2 compare the interference patterns obtained with unchirped (270 as, full line) and chirped (400 as, dashed line) pulses. (c) Comparison between the spectral phase retrieved from this SPIDER spectrum (circles) and the exact spectral phase $\varphi(W)$ (full line). The dotted line shows the spectral intensity.

Since there is no fundamental limitation to the temporal resolution of attosecond SPIDER, and since it requires a filter bandwidth that is small compared to the pulse bandwidth ($\approx 10\%$), this method opens the route to the complete characterization of extremely short XUV pulses [11]. The numerical results presented in figure 8 show that it should also allow measurement of currently accessible pulses: using parallel observation ($\theta = 0$) and an 800 nm 10 GW cm $^{-2}$ shearing field, the spectral phase of a 400 as pulse centred at ≈ 100 eV is satisfactorily reconstructed. Note that the twin pulses are separated by 1.5 periods, to obtain a sufficient number of fringes in the photoelectron spectrum.

Numerical calculations show that 400 as pulses are near the upper limit for accurate reconstruction using 800 nm shearing fields. Beyond this duration, the photoelectron spectrum is distorted by the dressing field and attosecond SPIDER loses its accuracy. We will now see how such distortions can be exploited for attosecond measurements.

3.3. Attosecond streak camera [5]

As shown in section 2.3, an electron wavepacket generated by XUV photoionization can be deflected and accelerated by a strong laser field and both effects depend on the phase of the laser field at the time of ionization. The basic idea of the attosecond streak camera is to use this phase dependence to map the temporal

structure of the wavepacket on its energy or angular distribution. Measuring this distribution then allows one to evaluate the duration of XUV pulses shorter than the optical cycle. There are many possible configurations of this attosecond streak camera, depending on the laser field polarization and on the measurements performed on the photoelectrons [5].

In the only configuration implemented so far [7], the laser field is linearly polarized and the photoelectron spectrum is measured in a single direction. As opposed to the case of attosecond SPIDER, the best configuration now corresponds to the attosecond pulse being synchronized with the dressing field so that $|\partial^2\phi/\partial t^2| = |\partial\delta W/\partial t|$ is maximum. The photoelectron wavepacket is then streaked in energy by the laser field, with a maximum streaking speed (figure 7, right graphs). The resulting change in the width of the photoelectron spectrum is related not only to the duration, but also to the linear chirp of the XUV pulse.

This is illustrated on figures 9(a) and (b), which displays the Wigner distribution of a positively chirped X-ray pulse streaked with a negative energy streaking speed $\partial\delta W/\partial t < 0$. This shows that the energy streaking does not necessarily lead to a spectral broadening, but can for certain conditions induce a narrowing of the spectrum. Only for a Fourier-limited or a negatively chirped pulse does this negative streaking always widen the spectrum. Knowing the unstreaked and streaked spectra, as well as the streaking speed, the pulse duration and chirp of simple pulses can thus be estimated.

For this method to apply, the attosecond pulse should be shorter than half the laser period at $\theta = 0$ and a quarter of this period at $\theta = \pi/2$, so that the streaking remains linear in time. On the other hand, if the pulse gets too short, the wavepacket is hardly streaked by the laser field, and the induced width change becomes negligible compared to its initial spectral width. The resulting resolution limit depends on the maximum streaking speed that can be achieved, which is in turn determined by the maximum laser intensity that can be applied to the atoms. The exact value of this resolution limit depends on the experimental parameters (e.g. noise and spectrometer resolution), but it can reasonably be estimated to be of the order of 100 as for an electron energy of 100 eV [5, 7].

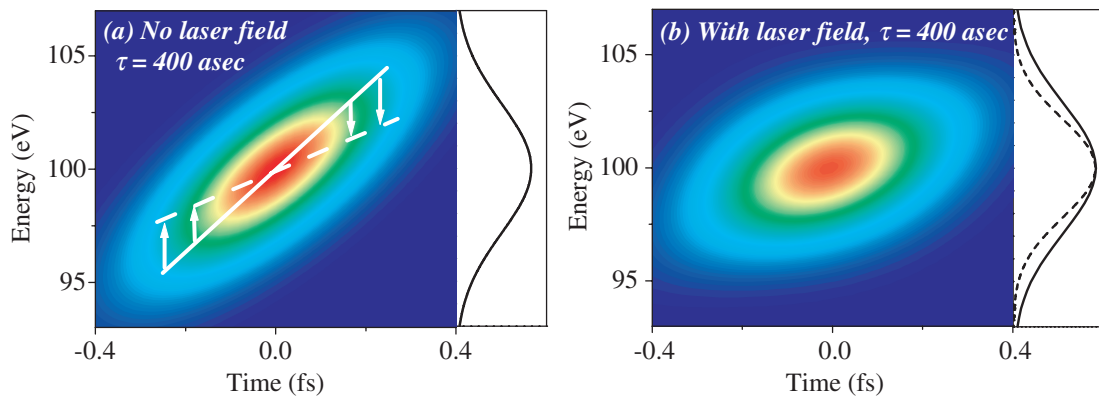


Figure 9. Wigner distributions and energy spectra of the photoelectron wavepacket at $\theta = 0$, for a chirped 400 as pulse (same as in figure 8), with and without the dressing laser field. In the right panel of (b), the photoelectron spectra with (dashed line) and without (full line) the laser field are compared. The arrows in (a) sketch the streaking effect ($\partial\delta W/\partial t < 0$) of the laser field on the photoelectron energy ($\lambda = 800$ nm, $I = 0.25$ TW cm $^{-2}$, pulse synchronized with the minimum of the optical cycle).

3.4. Beyond the attosecond streak camera: chronocyclic tomography [26, 33]

The attosecond streak camera method was initially proposed to estimate the duration and linear chirp of single attosecond pulses with simple temporal structures. Using the concepts of tomography, it has now been improved to allow their full temporal characterization. This is possible because, beyond its width, the detailed shape of the streaked spectrum contains information on the exact temporal structure of the pulse, including high-order terms in the spectral phase $\varphi(W)$ [32]. As first emphasized in [33], a technique called simplified chronocyclic tomography, recently developed for ultrashort visible pulse metrology [26], can be directly transposed to attosecond pulses, and allows for a full reconstruction using a very limited number of streaked spectra.

The idea underlying simplified chronocyclic tomography is that a streaking in energy corresponds, to first order, to a rotation of the Wigner distribution $Y(t, W)$ in chronocyclic space, as illustrated in figure 9. Given that an energy spectrum is a projection of the Wigner distribution along the energy axis, measuring this spectrum for different streaking speeds provides projections of $Y(t, W)$ along different directions. Like in conventional tomography, reconstructing the full Wigner distribution would require one to perform such measurements for many rotation angles, which is not possible using only an energy streaking. Conversely, simplified chronocyclic tomography only requires a few rotations, by taking advantage of the fact that partial information on the Wigner distribution generally suffices to reconstruct the temporal profile of the pulse.

For a streaking speed $\alpha = dW/dt$, the measured streaked spectrum S_α is given by

$$S_\alpha(W) = \int Y(t, W - \alpha t) dt. \quad (9)$$

It is then easy to demonstrate that

$$\frac{\partial S_\alpha}{\partial \alpha} = - \frac{\partial}{\partial W} \int t Y dt. \quad (10)$$

Knowing that the group delay $\partial\varphi/\partial W$ is equal to the first-order temporal moment of the Wigner distribution, $\partial\varphi/\partial W = \int t Y dt / \int Y dt$, this finally leads to

$$\frac{\partial S_\alpha}{\partial \alpha} = - \frac{\partial}{\partial W} \left[S_0 \frac{\partial \varphi}{\partial W} \right], \quad (11)$$

where $S_0 = \int Y dt$ is the unstreaked spectrum. Thus, knowing the first-order derivative of the spectrum with respect to the streaking speed α , for all energies W , the group delay can be determined by a simple step-by-step integration in energy. This also requires the knowledge of the unstreaked spectrum S_0 , which should be free of spectral gaps.

This method thus relies on the accurate determination of $\partial S_\alpha(W)/\partial \alpha$ at $\alpha = 0$. This derivative can be estimated to second order in α , using only the unstreaked spectrum S_0 and one streaked spectrum S_{α_1} . However, using two streaked spectra S_{α_1} and $S_{-\alpha_1}$, corresponding to two opposite streaking speeds, $[S_{\alpha_1} - S_{-\alpha_1}]/2\alpha_1$ provides a more accurate estimate, to third order in α . S_0 , S_{α_1} and $S_{-\alpha_1}$ are shown in figure 10 for a pulse with a spectral phase composed of second- and third-order terms. The spectral phase retrieved from these spectra is compared to the exact $\varphi(W)$, and a satisfactory agreement is observed. To obtain a better accuracy on

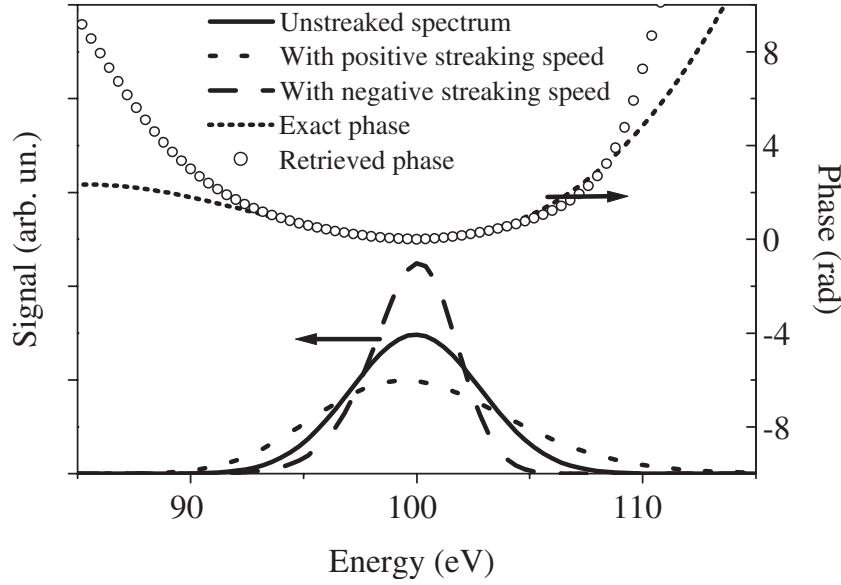


Figure 10. Unstreaked spectrum S_0 and streaked spectra S_{α_1} and $S_{-\alpha_1}$ for two opposite streaking speeds ($\alpha_1 \approx 10 \text{ eV fs}^{-1}$, obtained with $\lambda = 800 \text{ nm}$, $I = 0.4 \text{ TW cm}^{-2}$, $\theta = 0$ and the pulse centred at extrema of the optical cycle), for a 345 as pulse whose spectral phase is a combination of third-order and positive second-order terms. This spectral phase is compared to the one retrieved by applying the treatment described in the text to these three spectra. Data courtesy of V. Yakovlev.

$\partial S_\alpha / \partial \alpha$, or for measurements with large streaking speeds, spectra should be measured for a larger number of streaking speeds, thus enabling one to eliminate higher order terms in the polynomial expansion of S_α around $\alpha = 0$.

We emphasize that in this issue, Yakovlev and co-workers propose another novel approach, also derived from tomographic techniques, to fully reconstruct the pulse from a larger ensemble of streaked spectra.

3.5. FROG CRAB [13]

The different methods we have described so far are restricted to attosecond fields shorter than the optical period of the dressing laser field. We now describe a technique that does not suffer from this restriction: frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts (FROG CRAB [34], hereafter called CRAB).

CRAB is inspired from frequency-resolved optical gating (FROG), a widely used technique for the full temporal characterization of visible femtosecond pulses [35]. FROG consists of decomposing the pulse to be characterized in temporal slices thanks to a temporal gate $G(t)$ and then measuring the spectrum of each slice. This provides a two-dimensional set of data, called a spectrogram or FROG trace, given by

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) \exp(i\omega t) \right|^2, \quad (12)$$

where $E(t)$ is the field of the pulse to be characterized and τ is the variable delay between the gate and the pulse. The gate may either be a known function of the pulse, $G(t) = F[E(t)]$, as in most implementations of FROG, or an unrelated—and

possibly unknown—function (blind-FROG) [36]. Various iterative algorithms, such as the very efficient principal component generalized projections algorithm (PCGPA) [36], can then be used to extract both $E(t)$ and $G(t)$ from $S(\omega, \tau)$.

In the case of attosecond fields, comparing equation (3) with the FROG equation (12) shows that a dressing laser field, acting as an electron phase modulator, can be used as a temporal phase gate for FROG measurements on photoelectron wavepackets. Indeed, although the FROG technique is best understood qualitatively by considering measurements performed with amplitude gates $G(t) = f(t) \in \Re$, pure phase ‘gates’ $G(t) = \exp[i\phi(t)]$ can also be used [27]. They provide spectrograms that are generally not very intuitive, but that contain all the information required for the full reconstruction of the pulse and the gate.

One essential advantage of CRAB compared to other techniques is its versatility: it applies to attosecond fields of arbitrarily complex temporal structure [13]. This is illustrated in figure 11, which shows the CRAB trace of a rather complicated attosecond field, obtained with a 800 nm 7 fs chirped laser pulse as a phase gate. The spectrum of this field qualitatively corresponds to what would be obtained by selecting the end of the plateau and the cut-off of the high-harmonic spectrum generated in a gas by a few-cycle laser pulse. The spectral phase was assumed to be constant.

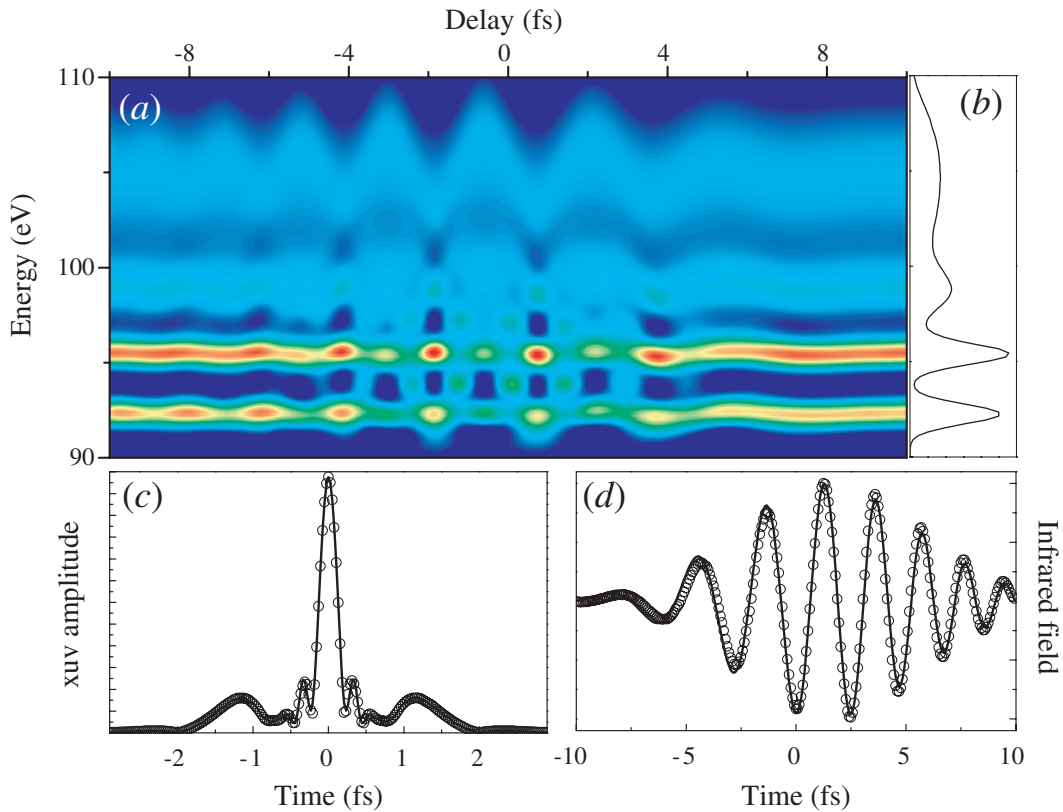


Figure 11. (a) CRAB trace of a complex attosecond field, whose spectrum is shown in panel (b). The spectral phase is constant. In (c) the exact temporal amplitude profile (full line) is compared to the one retrieved from this CRAB trace (dots) using PCGPA. The field of the laser pulse used as a gate for this measurement ($\lambda = 800$ nm and $I = 0.05$ TW cm $^{-2}$) is shown in (d) (full line) and is also compared to the field retrieved from the CRAB trace (dots). The observation angle is $\theta = 0$.

The corresponding temporal profile is composed of a main central peak of ≈ 200 as duration, surrounded by two much weaker satellite peaks at ± 1.3 fs (i.e. half the optical period T of the dressing laser field). These satellites originate from the narrow peaks in the lower part of the spectrum, while the whole spectrum contributes to the central burst. The temporal amplitude profile of the attosecond field retrieved from this CRAB trace after 200 iterations of PCGPA is in excellent agreement with the exact profile (figure 11 (c)).

As shown in the lower right graph, the laser field $\mathbf{E}_L(t)$ used for this measurement can also be deduced from the CRAB trace. This is possible because PCGPA retrieves the phase gate $\exp[i\phi(t)]$. For measurements around $\theta = 0$, terms of second order in $\mathbf{A}(t)$ can generally be neglected in equation (4): $\mathbf{E}_L(t)$ can then be derived from $\phi(t)$ using $\mathbf{v} \cdot \mathbf{E}_L(t) \approx -\partial^2 \phi / \partial t^2$. We emphasize that despite its strong chirp, this laser pulse is perfectly suitable for CRAB measurements.

Due to the complicated gate that is used, it is at first sight difficult to identify what features of the CRAB trace of figure 11 contain the information on the temporal structure of the attosecond field. Analysing the CRAB traces of simpler attosecond fields (figure 12) provides some insight and allows one to identify two main relevant structures in this trace: the overall oscillations of the continuous upper part and the oscillating sidebands in the discrete lower part.

The two upper graphs of figure 12 show the CRAB traces of single attosecond pulses (Fourier-limited pulse in (a), chirped pulse in (b)). For a given delay τ_0 , the

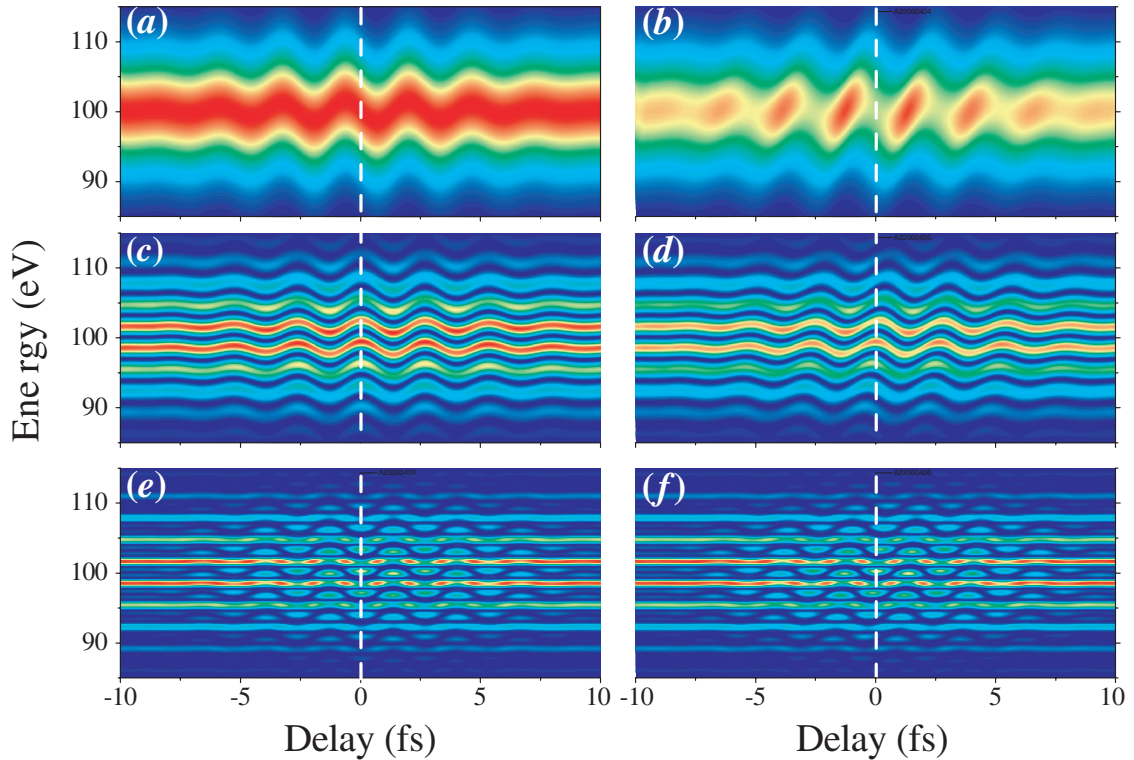


Figure 12. CRAB traces of simple attosecond fields, at $\theta = 0$, with $I = 0.05 \text{ TW cm}^{-2}$ and $\lambda = 800 \text{ nm}$. In (a) the field is a single Fourier-limited attosecond pulse of 150 as duration, while in (b) it consists of a single chirped attosecond pulse of the same bandwidth and 620 as duration. In (c) and (d) a second identical pulse was added to these fields, shifted in time by $T/2 \approx 1.3$ fs. In (e) and (f) the field is composed of four identical pulses with $T/2$ between successive pulses.

spectrum $S(\omega, \tau_0)$ can be considered as a streak camera spectrum, each delay corresponding to a different streaking speed. Like in chronocyclic tomography, the information on the temporal structure of the pulse is thus obtained through different rotations of the Wigner distribution. A pattern that closely resembles these traces is observed in the upper part of the CRAB trace of figure 11: the information on the temporal structure associated with this continuous part of the spectrum is thus obtained through streaking.

The two middle graphs of figure 12 display the CRAB traces obtained when a second identical pulse is added to the first one, with a time shift of half an optical period T . Although an energy streaking still occurs, another effect dominates here. Because the field is composed of two time-shifted replicas, the spectrum now presents fringes spaced by $2/T \approx 3$ eV. Since the two pulses are separated by half an optical cycle, they do not experience the same phase modulation by the laser field (figure 13). The phase difference $\Delta\phi = \phi(\tau + T/2) - \phi(\tau)$ depends on the delay between the laser field and the attosecond pulses, and induces a shift of the spectral fringes. This shift is maximum twice every optical period, for delays such as shown on figure 13(a), while no shift occurs for delays such as shown on figure 13(b), where the induced phase difference is 0. The spectral fringes thus oscillate at the laser frequency when the delay is scanned.

When the attosecond pulses are Fourier limited, the maximum phase shift $\Delta\phi_{\max}$ occurs at the same delays for all frequencies and the fringes oscillate in phase all across the spectrum (figure 12(c)). In contrast, for a chirped pulse, the different frequency components are linearly separated in time and thus experience this maximum phase shift at different delays. The phase of the fringe oscillations then varies linearly across the spectrum (figure 12(d)).

The two lower graphs of figure 12 show the evolution of the CRAB traces when more such pairs of pulses are added to the *as* field, every optical period T . Due to the periodic repetition of the same pattern, discretized versions of the previous traces (c) and (d) are obtained, with a sampling step of $1/T \approx 1.5$ eV: the oscillating fringes turn into sidebands oscillating at twice the laser frequency. Consequently, the phases of these sideband oscillations provide the group delay

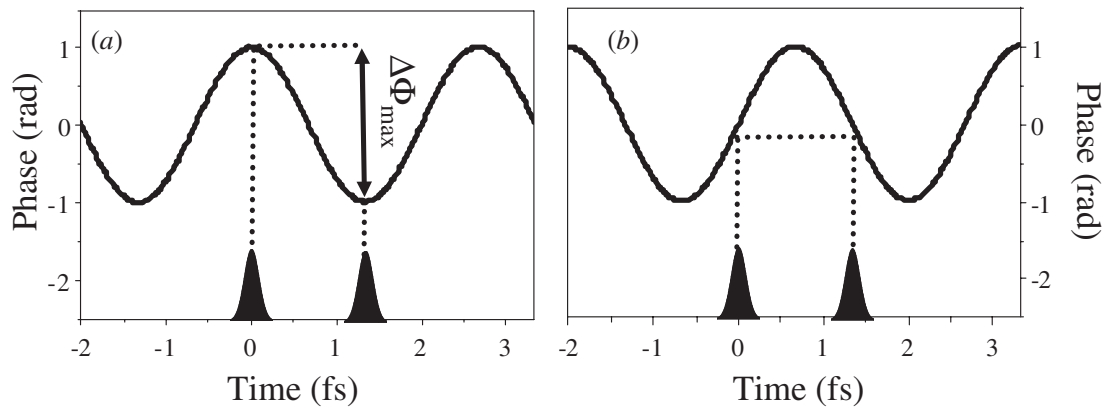


Figure 13. Two different synchronizations of the laser-induced phase modulation $\phi(t)$ at $\theta = 0$ with a pair of attosecond pulses spaced by $T/2 \approx 1.3$ fs. In (a) the field induces a maximum phase shift between the two wavepackets generated by these pulses, which leads to a shift of the spectral fringes. In (b) the delay has been increased by $T/4$: no phase shift is induced and the positions of the spectral fringes are not affected. The $\phi(t)$ curve was obtained with $W = 100$ eV, $I = 0.05$ TW cm $^{-2}$ and $\lambda = 800$ nm.

(i.e. the arrival time) of the different spectral components of the attosecond pulses, as already shown for attosecond trains [8, 37]. This group delay is independent of frequency for Fourier-limited pulses (figure 12(e)) and varies linearly for chirped ones (figure 12(f)). A pattern similar to these traces is observed in the lower part of the CRAB trace of figure 11: this is mostly where the information on the satellite pulses of figure 11 lie.

CRAB is an extremely powerful technique for the characterization of attosecond fields, which directly benefits from the extensive researches that have been carried out on FROG [35]. It establishes a direct and unexpectedly simple connection between the technique used in [7] for single *as* pulse and the technique used in [8] for attosecond trains. CRAB provides the first systematic and straightforward procedure to retrieve the full temporal structure of the laser pulse and the *as* bursts from such measurements.

4. Conclusion

Most techniques used to characterize femtosecond light pulses can be transposed to attosecond XUV pulses, using photoelectron wavepackets as an intermediate tool. A dressing laser field acting as an ultrafast electron phase modulator enables one to characterize these wavepackets and thus to fully retrieve the temporal structure of XUV fields.

This modulator is naturally synchronized with the attosecond fields obtained by high-harmonics generation in gases, and its frequency is perfectly determined by the laser wavelength and the direction of observation of the photoelectrons: it is thus an ideal time reference for temporal characterization with attosecond precision. The amplitude of the modulation can also be controlled by the laser intensity. Based on these ideas, a scheme called FROG CRAB has recently been proposed [13], which for the first time enables the full temporal characterization of *arbitrary* attosecond XUV fields.

These characterization techniques are likely to have an impact on attosecond science that goes beyond the temporal characterization of attosecond pulses: as in the experiment presented in [1], they could indeed be applied to the characterization of electron wavepackets which result from processes more complex than the direct photoionization of atoms or molecule, such as Auger relaxation. In such an experiment, an attosecond pulse would be used to impulsively trigger an ultrafast process, and the resulting wavepacket generated in the continuum would be characterized in phase and amplitude using one of the techniques described in this paper.

Acknowledgments

F. Quéré gratefully acknowledges V. Yakovlev for discussions on chronocyclic tomography and for providing the data of figure 10.

References

- [1] DRESCHER, M., HENTSCHEL, M., KIENBERGER, R., ULBERACKER, M., YAKOVLEV, V., SCRINZI, A., WESTERWALBESLOH, T., KLEINEBERG, U., HEINZMANN, U., and KRAUSZ, F., 2002, *Nature*, **419**, 803.

- [2] NIIKURA, H., LÉGARÉ, F., HASBANI, R., BANDRAUK, A. D., IVANOV, M. YU., VILLENEUVE, D. M., and CORKUM, P. B., 2002, *Nature*, **417**, 917.
- [3] NIIKURA, H., LÉGARÉ, F., HASBANI, R., IVANOV, M. YU., VILLENEUVE, D. M., and CORKUM, P. B., 2003, *Nature*, **421**, 826.
- [4] HENTSCHEL, M., KIENBERGER, R., SPIELMANN, C., REIDER, G. A., MILOSEVIC, N., BRABEC, T., CORKUM, P., HEINZMANN, U., DRESCHER, M., and KRAUSZ, F., 2001, *Nature*, **414**, 509.
- [5] ITATANI, J., QUÉRÉ, F., YUDIN, G. L., IVANOV, M. YU., KRAUSZ, F., and CORKUM, P. B., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 173903.
- [6] KITZLER, M., MILOSEVIC, N., SCRINZI, A., KRAUSZ, F., and BRABEC, T., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 173904.
- [7] KIENBERGER, R., GOULIELMAKIS, E., UIBERACKER, M., BALTUSKA, A., YAKOVLEV, V., BAMMER, F., SCRINZI, A., WESTERWALBESLOH, T., KLEINEBERG, U., HEINZMANN, U., DRESCHER, M., and KRAUSZ, F., 2004, *Nature*, **427**, 817.
- [8] PAUL, P. M., TOMA, E. S., BREGER, P., MULLOT, G., AUGE, F., BALCOU, PH., MULLER, H. G., and AGOSTINI, P., 2001, *Science*, **292**, 1689.
- [9] TZALLAS, P., CHARALAMBIDIS, D., PAPADOGIANNIS, N. A., WITTE, K., and TSAKIRIS, G. D., 2003, *Nature*, **426**, 267.
- [10] SCRINZI, A., GEISSLER, M., and BRABEC, T., 2001, *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 412.
- [11] QUÉRÉ, F., ITATANI, J., YUDIN, G., and CORKUM, P., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 073902.
- [12] MULLER, H. G., 2002, *Appl. Phys. B*, **74**, S17.
- [13] MAIRESSE, Y., and QUÉRÉ, F., 2004, *Phys. Rev. A*, submitted.
- [14] WALMSLEY, I., and WONG, V., 1996, *J. opt. Soc. Am. B*, **13**, 2453.
- [15] GALLAGHER, T. F., 1988, *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2304.
- [16] CORKUM, P. B., BURNETT, N. H., and BRUNEL, F., 1989, *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 1259.
- [17] LEWENSTEIN, M., BALCOU, P., IVANOV, M. Y., L'HUILLIER, A., and CORKUM, P. B., 1994, *Phys. Rev. A*, **49**, 2117.
- [18] DYKHNE, A. M., and YUDIN, G. L., 1977, *Sov. Phys. Usp.*, **20**, 80.
- [19] DYKHNE, A. M., and YUDIN, G. L., 1978, *Sov. Phys. Usp.*, **21**, 549.
- [20] DRESCHER, M., HENTSCHEL, M., KIENBERGER, R., TEMPEA, G., SPIELMANN, C., REIDER, G. A., CORKUM, P. B., and KRAUSZ, F., 2001, *Science*, **291**, 1923.
- [21] COHEN, L., 1989, *Proc. IEEE*, **77**, 941.
- [22] SCHINS, J. M., BREGER, P., AGOSTINI, P., CONSTANTINESCU, R. C., MULLER, H. G., GRILLON, G., ANTONETTI, A., and MYSYROWICZ, A., 1994, *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 2180.
- [23] GLOVER, T. E., SCHOENLEIN, R. W., CHIN, A. H., and SHANK, C. V., 1996, *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 2468.
- [24] TOMA, E. S., MULLER, H. G., PAUL, P. M., BREGER, P., CHERET, M., AGOSTINI, P., LE-BLANC, C., MULLOT, G., and CHERIAUX, G., 2000, *Phys. Rev. A*, **62**, 061801(R).
- [25] DORRER, C., and KANG, I., 2003, *Opt. Lett.*, **28**, 477.
- [26] DORRER, C., and KANG, I., 2003, *Opt. Lett.*, **28**, 1481.
- [27] THOMSON, M., DUDLEY, J., BARRY, L., and HARVEY, J., 1998, *Opt. Lett.*, **23**, 1585.
- [28] DORRER, C., and KANG, I., 2002, *Opt. Lett.*, **27**, 1315.
- [29] IACONIS, C., and WALMSLEY, I. A., 1998, *Opt. Lett.*, **23**, 792.
- [30] GOULIELMAKIS, E., NERSISYAN, G., PAPADOGIANNIS, N. A., CHARALAMBIDIS, D., TSAKIRIS, G. D., and WITTE, K., 2002, *Appl. Phys. B*, **B74**, 197.
- [31] KIENBERGER, R., HENTSCHEL, M., UIBERACKER, M., SPIELMANN, CH., KITZLER, M., SCRINZI, A., WIELAND, M., WESTERWALBESLOH, TH., KLEINEBERG, U., HEINZMANN, U., DRESCHER, M., and KRAUSZ, F., 2002, *Science*, **297**, 1144.
- [32] QUÉRÉ, F., ITATANI, J., YUDIN, G. L., and CORKUM, P. B., 2004, *Ultrafast Optics IV* (New York: Springer).
- [33] KOSIK, E. M., CORMIER, E., DORRER, C., WALMSLEY, I. A., and DIMAURO, L. F., 2004, *Ultrafast Optics IV* (New York: Springer).
- [34] <http://www.dpi.qld.gov.au/fishweb/2455.html>.
- [35] TREBINO, R. (ed.), 2000, *Frequency-Resolved Optical Gating* (Dordrecht: Kluwer Academic Publishers).

- [36] KANE, D., 1999, *IEEE J. quantum Electron*, **35**, 1999.
- [37] MAIRESSE, Y., DE BOHAN, A., FRASINSKI, L. J., MERDJI, H., DINU, L. C., MONCHICOURT, P., BREGER, P., KOVACEV, M., TAIEB, R., CARRÉ, B., MULLER, H. G., AGOSTINI, P., and SALIÈRES, P., 2003, *Science*, **302**, 1540.

Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses

G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, and Ph. Martin

*Service des Photons, Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, DSM/DRECAM, CEN Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France*P. Audebert, J. C. Gauthier,* J.-P. Geindre, and T. Wittmann[†]*Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, Ecole Polytechnique, F91128 Palaiseau, France*

(Received 26 June 2003; published 9 February 2004)

Improving the temporal contrast of ultrashort and ultraintense laser pulses is a major technical issue for high-field experiments. This can be achieved using a so-called “plasma mirror.” We present a detailed experimental and theoretical study of the plasma mirror that allows us to quantitatively assess the performances of this system. Our experimental results include time-resolved measurements of the plasma mirror reflectivity, and of the phase distortions it induces on the reflected beam. Using an antireflection coated plate as a target, an improvement of the contrast ratio by more than two orders of magnitude can be achieved with a single plasma mirror. We demonstrate that this system is very robust against changes in the pulse fluence and imperfections of the beam spatial profile, which is essential for applications.

DOI: 10.1103/PhysRevE.69.026402

PACS number(s): 52.38.-r

I. INTRODUCTION

Laser pulses of femtosecond (fs) to picosecond (ps) duration with very high peak powers (up to the PW) and extremely high intensities (up to 10^{21} W/cm²) [1] are now available in many laboratories. Submitted to such intense light fields, almost any target gets rapidly ionized, and electrons in the resulting plasma oscillate at relativistic velocities. These light pulses therefore open the route to the experimental study of an extreme regime of laser-matter interaction [2], which has only been scarcely explored so far.

These ultrashort and ultraintense laser pulses are obtained with relatively small size subpicosecond laser systems thanks to the chirped pulse amplification (CPA) technique [3]. Two drawbacks of this technique are the presence of a temporal pedestal and of prepulses. The temporal pedestal has two origins: amplified spontaneous emission (ASE), which occurs on a nanosecond (ns) scale, and spectral clipping and residual aberrations of the spectral phase [4], giving rise to temporal structures on a sub-100 ps time scale. As for the prepulses, they are for instance due to the imperfect contrast of some of the optical elements (e.g., Pockel's cell-polarizers combinations) used in this type of laser. In this paper, the temporal contrast at time t is defined as the ratio of the peak intensity of the main laser pulse, and the intensity of the background (pedestal or prepulses) at this time t .

For a number of ultrahigh intensity experiments, it is of prime importance to use very high contrast, prepulse-free laser pulses. This is particularly true for experiments involving laser-solid interaction. For a peak intensity of 10^{18} W/cm² at the fundamental frequency of the laser, the energy contained in the pedestal or prepulses at the output of

a typical high-power laser is generally high enough to generate a low-density plasma at the surface of a solid target, well before the main pulse. Then, because of the hydrodynamic expansion of this preplasma, the main pulse will not interact with a steep density-gradient solid target. This impedes the study of numerous exciting high-intensity laser-solid interaction processes, such as relativistic harmonics generation on solid surfaces [5], or Brunel absorption [6,7].

Increasing the peak intensity requires a parallel increase of the temporal contrast, so that prepulses and ASE remain at the same intensity level. Consequently, there has been intense research to increase the temporal contrast. This can be achieved either by improving the laser chain, or by cleaning the ultrashort pulse from its pedestal and prepulses at the end of the chain. The main methods studied so far are as follows:

(1) Electro-optic methods, which can remove ns prepulses for systems with a regenerative amplifier [8]; (2) methods based on nonlinear optical processes, such as frequency doubling at the output of the laser [9], clean pulse injection [10], nonlinear Sagnac interferometer [11], optical parametric CPA [12]; (3) self-induced plasma shuttering, also called plasma mirror (PM) [12–17].

In this work, we focus on the self-induced plasma shuttering method. The principle of plasma mirrors is the following. A laser beam is focused on a low-reflectivity vacuum-dielectric interface, so that most of the pedestal and prepulse energy is transmitted. As the intensity increases in time, electrons are excited in the dielectric medium by nonlinear mechanisms such as multiphoton absorption. The medium therefore acquires a “metallic” character. If the electron density exceeds the critical density at the laser wavelength (2×10^{21} cm⁻³ at 800 nm), the reflectivity suddenly increases: the plasma mirror is “triggered,” and the laser beam is reflected. For a proper choice of the incident fluence on the PM, triggering only occurs at the very beginning of the main pulse, and the reflected beam thus has an improved contrast ratio.

If the fluence is too high, triggering might occur too early, and the pedestal and prepulses will also be partly reflected.

*Present address: CELIA, Université Bordeaux I, 33405 Talence, France.

[†]Also at Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, Szeged, Hungary.

Moreover, with such an early triggering, the motion of the PM surface before and during the main pulse might distort the laser beam wave front, and thus prevent a good subsequent focusing. If the fluence is too low, triggering might occur too late or not occur at all. Therefore, the incident fluence is the most crucial parameter to make an efficient PM.

The first demonstration of an increase in the contrast ratio of a subpicosecond laser with a PM was given in Ref. [12]. A maximum reflectivity of about 50% and a tenfold improvement of the contrast ratio were obtained using a bulk dielectric plate. The authors underlined that the use of an antireflection coating on the dielectric plate would increase the contrast even more. A PM using a liquid jet, which allows to extend the method to high repetition rates, was implemented for the first time in Ref. [14]. The authors studied the reflectivity and contrast enhancement as a function of the incidence angle, polarization, and peak intensity. The highest contrast enhancement with a single PM, by a factor of 500, was reported in Ref. [15], which also emphasized the spatial filtering effect of the PM. A high-dynamic-range autocorrelation of the pulse after the PM provided the first direct evidence of the suppression of the pedestal. No strong distortion of the beam spatial profile was observed for the fluences used.

This paper presents the first detailed experimental and theoretical study of the PM. This study provides all the parameters required to design an efficient plasma mirror system, matched to the characteristics of a given high-intensity laser system.

The experimental study of the PM consisted in measuring the following quantities.

- (1) Space and time-integrated reflectivities, using energy meters.
- (2) Time-integrated reflectivities with spatial resolution, obtained by imaging the PM surface.
- (3) Time- and space-resolved reflectivities. This was done by applying a chirp on the incident pulse. Measuring the spectrum of the reflected pulse then provides its temporal profile in a single shot. This provides a direct evidence of pedestal suppression with a PM, and also gives the turn-on time of the PM.
- (4) Distortion of the beam spatial profile in the far-field (PM surface) and the near-field. This was, respectively, achieved by imaging the beam in the plane of the PM surface, and some distance after the PM. The near-field measurements provide qualitative information on the wave-front distortion induced in the PM plane.
- (5) Time- and space-resolved position of the PM surface with $\lambda/50$ (16-nm) longitudinal resolution. This was again obtained in a single shot with a chirped incident pulse, by measuring its spectral phase after the PM using spectral-phase interferometry. This provides the time-resolved wave-front distortion induced by the PM.

All these measurements were performed on two types of targets, a bulk dielectric sample (quartz, 10% initial reflectivity in our experimental conditions) and an antireflection coating (less than 0.3% initial reflectivity), for different fluences above the PM triggering threshold. All the presented

results are for an *S*-polarized incident beam, with an incidence angle of 45°. We have found that the PM gives lower absolute reflectivities with *P*-polarized waves. This is probably due to resonant absorption [18] that occurs for *P*-polarized waves when the critical density is reached.

The theoretical study consisted in calculating the space- and time-dependent electric field and excitation density in the target, and the resulting instantaneous reflectivity. This was done by solving a one-dimensional (1D) Helmholtz equation [19], coupled with a nonlinear population equation describing the ionization of the dielectric target by the incident laser pulse. To simulate the results obtained at the highest intensities, the FILM code [20] was used to study the hydrodynamic expansion of the plasma on a sub-ps time scale.

We describe the experimental setup in Sec. II, and present the experimental results in Sec. III. The two models used in the simulations are described in Sec. IV. Section V is a detailed discussion of the performances of the PM. All fluences given in this paper correspond to the value at the center of the focal spot.

II. EXPERIMENTAL SETUP

The experiment was performed on the LUCA laser, at Saclay Laser Interaction Center. This is a high-power Ti:sapphire laser based on the CPA technique. A Kerr-lens mode-locked Ti:Sapphire oscillator generates a pulse train of 40 nm spectral width. These pulses are temporally stretched to about 300 ps before being amplified in a Ti:sapphire regenerative amplifier, followed by two four-pass amplifiers. After recompression, the energy per pulse is 100 mJ, and the pulse duration is 60 fs with a central wavelength of 800 nm. A few millijoules were used in this experiment.

LUCA's contrast has been measured with a third-order cross correlator, and is $\approx 10^6$ one nanosecond before the main pulse, and reaches $\approx 10^4$ two picoseconds before the main pulse. The maximum peak intensity used in all measurements was of the order of a few 10^{15} W/cm², leading to maximum pedestal intensities of a few 10^{11} W/cm² on a ps time scale, and a few 10^9 W/cm² on a ns time scale. This is below the single-shot damage thresholds of dielectrics [21,22]. This suggests that in all our measurements, it was the main pulse, and not the pedestal, that triggered the PM. This is consistent with the fact that, when the oscillator was switched off, the ASE alone did not produce any damage at the target's surface even for multiple-shot exposition.

The experimental setup is shown in Fig. 1. The laser beam is separated into two parts (BS1): the main beam which reflects on the target (T), and a low-flux reference beam. To have the same configurations along the two paths, both the main and reference beams are focused (L1 and L3) and then imaged (L2 and L4), with a similar overall magnification factor. Special care was taken in the design of this experiment to avoid any nonlinearity in the transport of these beams, especially in the lenses and in the windows of the chamber. The main beam, of 18-mm top-hat aperture, is focused on the target with a long focal length MgF₂ lens (L1, $f=1200$ mm), chosen for its low nonlinear refractive index.

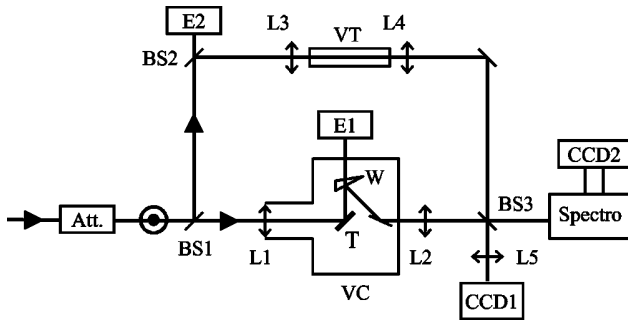


FIG. 1. Experimental setup. Att. stands for beam attenuator, BS for beam splitter, L for lens, T for target, W for wedge, E for energy meter, VC for vacuum chamber, and VT for vacuum tube. L5 was only set when the beam was imaged some distance after the PM surface.

After reflection on the target, a reflection on a wedge (W) is used to reduce the energy going through the output window. The part of the beam transmitted through the wedge is collected in a single-shot calorimeter (E1). The incident energy was simultaneously deduced from the measurement of a leak (BS2) in the reference beam with an identical calorimeter (E2). After proper calibration, the ratio of the reflected and incident energies provides the absolute space- and time-integrated reflectivity.

Both beams were imaged (lenses L2 and L4) on a high-dynamic charge coupled device (CCD) camera (CCD1). The focus of L2 was adjusted to image the target surface. The main beam image then gives access to a space-resolved relative reflectivity, and can also be used to calculate a space-integrated reflectivity. Given the magnification of this imaging setup and the CCD pixel size, a pixel corresponds to $3\text{ }\mu\text{m}$ in the object plane. The f number of L2 was $f/12$, leading to a spatial resolution of $\approx 12\text{ }\mu\text{m}$. The full width at half maximum (FWHM) of the focal spot on the target measured with this system was $30\text{ }\mu\text{m}$.

A second lens (L5) could be inserted in addition to L2, to image a plane located 60 cm after the target. In this configuration, comparing the images obtained at low and high intensities enabled to determine the distortion induced by the PM on the near-field beam spatial profile.

Both beams are simultaneously (BS3) imaged on the entrance slit of an imaging spectrometer (800 lines/mm, 1 m focal length).

If the two beams are separated spatially along the slit, this enables to compare their spectra, and measure in a single shot the effect of the PM on the main beam spectrum.

Superimposing the two beams spatially on the slit enables spectral interferometry measurements. This technique is based on the fact that two pulses, separated by a delay τ , interfere when they are sent in a spectrometer where dispersion is larger than the inverse of the delay. We typically used delays of a few ps between the two pulses. This is much larger than the coherence time of both beams. In this case, the relative spectral phase of the two pulses can be exactly extracted from the spectral interferogram fringe pattern using the mathematical treatment described in Ref. [23]. The effect of the PM on the main beam spectral phase is obtained by

comparison with a low-energy shot, where the PM does not trigger.

All these measurements have been carried out both on near Fourier-limited pulses (60 fs duration) and on pulses chirped up to 4 ps. This chirp was introduced by setting the distance between the two gratings of the compressor so that the pulse is not recompressed to its Fourier limit. In this way, a quadratic spectral phase (linear chirp) remains on both the main and reference beams after compression.

Measurements using chirped pulses have two interests. First, we can see how the PM performs for longer (ps) pulses. But most interestingly, chirping the pulses makes it possible to follow in time the triggering and possible distortion of the PM in a single shot [24,25]. Indeed, for a pulse with a large chirp (duration large compared to the Fourier limit), there is a one-to-one mapping between time and frequency: each frequency corresponds to an arrival time on the target. To recover the temporal information and have access in a single shot to the behavior of the PM during the whole pulse duration, we only need to perform spectral measurements. The ultimate temporal resolution is the inverse of the spectral bandwidth of the pulse [25]. Typically, pulses have been chirped up to 4 ps and the temporal resolution is of the order of 60 fs.

Again, for measurements with chirped pulses, the main beam and the reference beam can either be spatially separated or superimposed on the spectrometer entrance slit. In the first case, comparing the spectra of the two beams provides the time-dependent reflectivity of the PM. In the second case, interferences between the two spectra, and comparison with a low-intensity reference shot, provide the change of spectral phase induced by the PM on the main beam. As we will see later, this change in spectral phase $\Delta\varphi(\omega(t))$ gives access to the change in position $\Delta z(t)$ of the PM surface, via $\Delta\varphi(\omega(t)) = 4\pi \cos(\pi/4) \Delta z(t)/\lambda$. The resolution on the spectral phase was limited by noise and was measured to be of the order of 0.1 rad: this corresponds to a $\approx \lambda/50$ (16-nm) resolution on the PM surface position.

III. EXPERIMENTAL RESULTS

A. Time-integrated reflectivities on quartz and antireflection coatings

Figure 2 shows the time-integrated reflectivity, measured at the center of the focal spot on the PM (i.e., the peak reflectivity), as a function of the fluence of a 60 fs pulse, in the case of quartz and of an antireflection coated dielectric plate.

In the case of quartz, below 5 J/cm^2 , the reflectivity is equal to 10%, which is indeed the expected reflectivity for quartz for S -polarized 800 nm light at 45 incidence. Above this threshold fluence, the reflectivity increases continuously up to about 70% at 50 J/cm^2 . Note that the optical breakdown threshold of quartz at this pulse duration is a few J/cm^2 [21,22,26]. This shows that this PM is a single-shot system. A fresh part of the target is required for each laser shot.

In the case of an antireflection coated dielectric plate, the initial reflectivity is less than 0.3%, while the high-fluence reflectivity is almost the same as for quartz. Thus, the con-

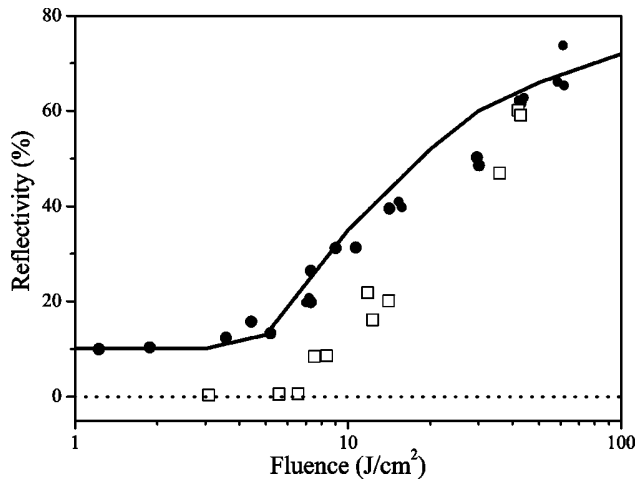


FIG. 2. Peak reflectivity of quartz (full dots) and antireflection coating (hollow squares), for a 60 fs incident pulse, as a function of the incident fluence. Note that with this linear y scale, the reflectivity of the antireflection coating at low fluence appears as ≈ 0 . Full line: theoretical curve obtained from the population-propagation model.

trast between the high-fluence and low-fluence reflectivities is increased by more than one order of magnitude on this kind of target: as can be seen in Fig. 2, this ratio can reach several hundreds. The fluence at which this PM triggers is almost the same as for quartz. Note that the two reflectivity curves for quartz and the antireflection coating are indeed expected to merge at high fluence: once the plasma gets overdense near the surface, the field only penetrates the target over the skin depth and no longer sees the multiple layers of the antireflection coating.

Figure 3 shows the time- and space-integrated reflectivity (i.e., the overall reflectivity) as a function of the incident fluence, for a 60 fs laser pulse, measured on a bulk quartz sample. Because of the spatial averaging, the overall reflectivity is slightly lower than the peak reflectivity once the PM

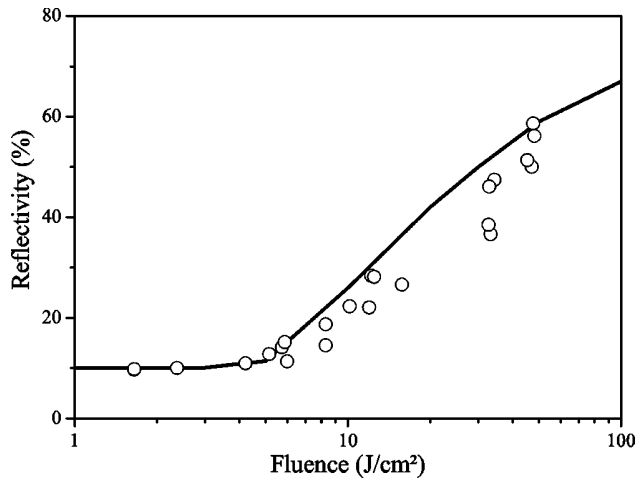


FIG. 3. Overall reflectivity of bulk quartz for a 60 fs incident pulse, as a function of the incident fluence. The full line shows the theoretical curve obtained from the population-propagation model.

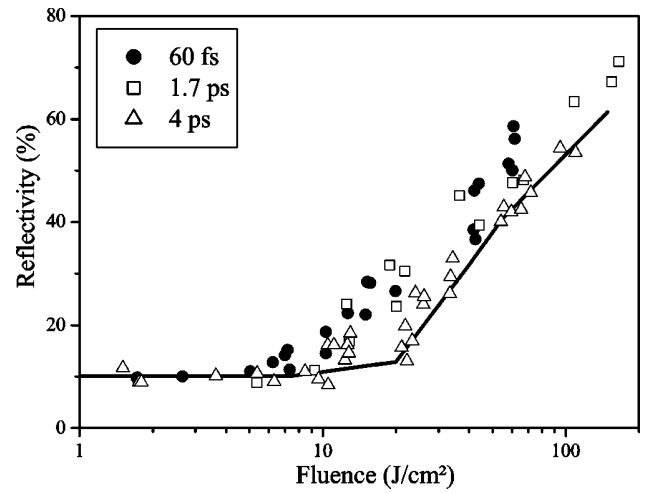


FIG. 4. Overall reflectivity for bulk quartz as a function of the incident fluence, for three different pulse durations. The full line shows the theoretical curve obtained from the population-propagation model for a 4 ps pulse.

triggers. This reflects a decrease of the PM reflectivity with the distance from the center of the focal spot.

Figure 4 shows the overall reflectivity measured for three pulse durations, 60 fs, 1.7 ps, and 4 ps, for a bulk quartz target. In this duration range, we see that the threshold fluence hardly varies with the pulse duration: this clearly indicates that the relevant factor for PM triggering is the incident fluence, and not the incident intensity. A similar behavior has been reported for optical breakdown thresholds of dielectrics [21,22].

B. Beam profiles

Figure 5 shows some cross sections of the main beam intensity profile (60 fs pulse duration) in two different planes: the surface of the target [far field, Figs. 5(a) and 5(b)], and a plane located 60 cm after the target [near-field, Figs. 5(c) and 5(d)]. Two sets of measurements are shown. In the upper panels, the incident fluence was too low for the PM to trigger, while in the lower panels, the incident fluence was 20 J/cm², and the PM triggered, as can be checked in Fig. 2.

Comparing the curves in Figs. 5(a) and 5(b) directly shows the effect of the PM on beam intensity profile, while comparing the curves in Figs. 5(c) and 5(d) gives some information on the wave-front distortion induced by the PM. However, this comparison can only be qualitative: for experimental reasons, the laser beam diameter on lens L1 was different for the low- and high-fluence shots.

The low-fluence far-field curve [Fig. 5(a)] shows that the incident beam profile on the target is close to an Airy function. This is the Fourier transform of the top-hat profile of the beam arriving on lens L1. The first Airy ring is clearly visible. On the low-fluence near-field curve [Fig. 5(c)], we observe that as the beam diverges from the target, it progressively recovers its top-hat shape, as expected.

At high fluence, the reflected beam profile in the target plane is still very smooth and clean. The first Airy ring is removed, its intensity being too low to trigger the mirror.

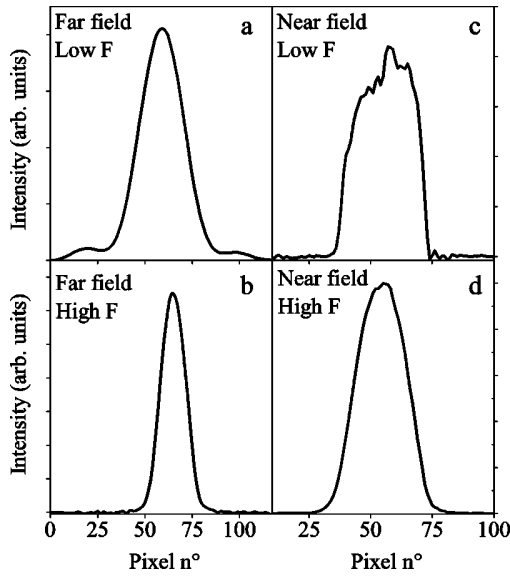


FIG. 5. Spatial profiles of the laser beam (60 fs pulse duration), at the surface of the target (a,b) and 60 cm after the target (c,d). The upper panels correspond to low-fluence shots, where the PM does not trigger, whereas the lower panels are high-fluence shots, where the PM triggered.

This shows that the PM acts as a low-pass spatial filter in the Fourier plane of lens L1.

This filtering effect leads to a smoothing of the sharp edges of the beam in the near field, as can be seen by comparing the low- and high-fluence profiles. These near-field curves also suggest that at this fluence, the PM does not induce a significant distortion of the wave front for a 60 fs pulse. A more accurate and quantitative characterization of the effect of the PM on the wavefront is provided by the interferometric measurements presented below (see Sec. III D).

C. Temporal dynamics of the reflectivity on an antireflection coating

Figure 6 shows the spectrum of the reflected beam, measured at the center of the focal spot, for a laser pulse chirped to 1.1 ps (i.e., 18 times its Fourier limit), for different incident fluences. The frequency scale has been converted into a time scale using the relationship $\omega(t) = t/\phi'' + \omega_0$ between instantaneous frequency $\omega(t)$ and time t , where ω_0 is the central frequency and ϕ'' is the group delay dispersion ($\phi'' = 2.4 \times 10^4$ fs² in this case). This relationship is only valid for sufficiently high chirps. For such pulses, the spectrum directly provides the temporal profile of the pulse.

The triggering of the PM is observed to appear earlier in the pulse as the intensity increases: the higher the intensity, the faster the critical density is reached. The time-averaged reflectivity, which is proportional to the area under the curve, is also seen to increase with the incident fluence.

On the lowest-fluence curves (e.g., 5.4 J/cm²), the PM is clearly observed to trigger significantly later than the maximum of the incident pulse, i.e., in the falling edge of the pulse. This would not be possible if multiphoton absorption

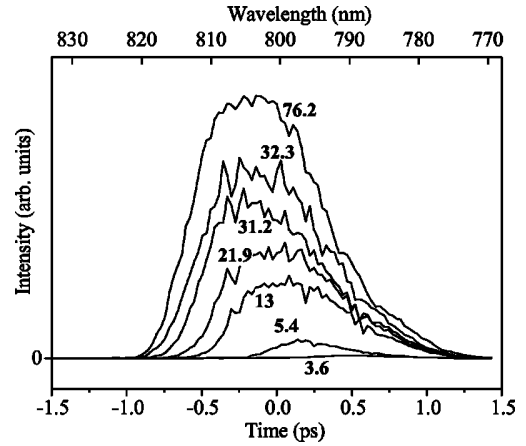


FIG. 6. Spectra of a pulse chirped to 1.1 ps, after reflection on a PM consisting of an antireflection coated plate target, for different incident fluences. The number on each curve indicates the corresponding incident fluence in J/cm². These spectra have been normalized by the incident fluence. The time scale has been obtained using the linear relationship between time and frequency for a linearly chirped pulse.

(or tunneling ionization) was the only mechanism involved in the generation of conduction electrons, since the efficiency of such a mechanism quickly falls off after the maximum of the pulse. On the opposite, the electronic avalanche mechanism can explain this observation, since its efficiency increases with the conduction electron density, and varies more gently with the laser field intensity. As we will see, the electronic avalanche mechanism indeed plays an important role in the triggering of the PM.

These curves also clearly show that in the fluence range that we have used, it is indeed the main pulse, and not the pedestal or a prepulse, that triggers the PM. Since we are dealing with an antireflection coating, the reflectivity before the main pulse is of the order of 0.3%, while we know from time-integrated measurements (Fig. 2) that the reflectivity reaches several tens of percent once the mirror is triggered. This implies that the PM improves the contrast by more than two orders of magnitude. In other words, these temporal profiles together with the reflectivity measurements provide a direct evidence of the efficient reduction of the pedestal.

D. Motion of the plasma mirror surface and wave-front distortion

Figure 7 shows a typical spectral interferogram obtained with a pulse chirped to 4 ps, with a fluence of about 140 J/cm². The horizontal axis corresponds to the wavelength scale and the vertical axis is the position along the spectrometer's slit. The fringe shift can easily be observed and is particularly strong in the center of the beam.

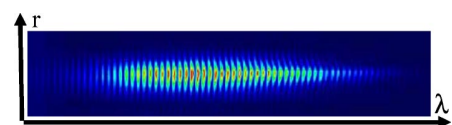


FIG. 7. Typical spectral interferogram for pulses chirped to 4 ps.

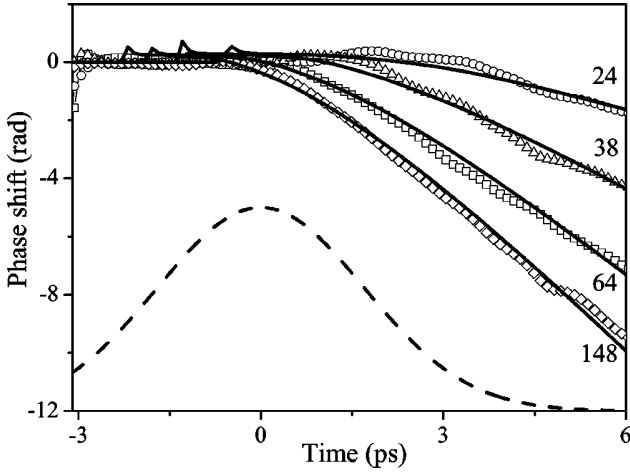


FIG. 8. Measured spectral phase of a pulse chirped to 4 ps, after reflection on the PM, for different incident fluences (hollow symbols). The number on each curve indicates the corresponding fluence in J/cm^2 . The lines are theoretical fits obtained with the hydrodynamic code. The time scale was obtained as in Fig. 6, and the incident pulse temporal shape is shown in dashed line as a reference.

This interferogram gives access to the spatially resolved relative spectral phase $\varphi(\omega)$ of the main and reference beam. By subtracting the relative spectral phase $\varphi_0(\omega)$ measured for a low-fluence shot, we obtain the change in spectral phase $\Delta\varphi(\omega)$ induced on the main beam by the PM.

As before, since there is a one-to-one correspondence between time and frequency for such chirped pulses, this measured spectral phase actually is a temporal phase, via the relationship $\Delta\varphi(\omega) = \Delta\varphi(t/\phi'' + \omega_0)$ ($\phi'' \approx 8.7 \times 10^4 \text{ fs}^2$ for a 4 ps pulse).

There are two possible ways the PM can affect the temporal phase of the main beam: (1) the phase of the PM complex reflection coefficient r varies in time; (2) the surface of the PM moves, thus changing the optical path length of the main beam. Our calculations of the complex reflection coefficient, presented in Sec. IV, show that its phase does not vary by more than π , and that this variation only occurs when the electron density is close to the critical density. For most incident fluences, this only occurs in a narrow time interval. This leaves the motion of the PM surface as the main source of phase shift. The experimental accuracy on $\Delta\varphi(t)$ is about 0.1 rad. As already shown in Sec. II, this gives an accuracy of the order of $\lambda/50$ (16 nm) on the position of the PM surface.

Figure 8 shows the measured temporal phase $\Delta\varphi(t)$ for different incident fluences of a 4 ps pulse. $\Delta\varphi(t)$ is 0 until the PM triggers. It then presents a linear behavior, with a slope that increases as the fluence grows. This is characteristic of a plasma expansion in vacuum, as we will see in Sec. IV. The slope is determined by the velocity of the expansion, which is in a first approximation equal to the ion acoustic velocity. This velocity increases with the ionic temperature, and hence with the incident fluence.

The dependence of $\Delta\varphi(t)$ on the incident fluence implies that the induced phase shift is not homogeneous across the

focal spot. In other words, the PM surface gets curved. Furthermore, this curvature varies in time. This possible distortion of the wave front for long pulses and high fluences is one bottleneck of the plasma mirror concept. We will see in Sec. V what ranges of pulse duration and fluence should be used to avoid this kind of distortion.

IV. MODELING OF THE PLASMA MIRROR

In this section, we describe the two models that we have used to describe (1) the optical switching of the PM and (2) its expansion into vacuum.

The first model (“population-propagation model”) describes the ionization of the target (in this case, bulk quartz) with a population equation, and the propagation of the laser field in this inhomogeneously ionized medium, using the Helmholtz wave equation. This model is very simple, but captures the essential physics of the plasma mirror. The second model is a hydrodynamic model based on a Lagrangian fluid code, and is required to describe the regime where the hydrodynamics must be included because the plasma expands into vacuum. The equations describing the ionization of the target and the propagation of the field are equivalent in these two models.

In all these simulations, it is assumed that the pedestal and the prepulses do not affect the target. This can be considered as a prerequisite to make a good plasma mirror (see Sec. V), and, knowing the contrast of the LUCA laser, is a reasonable assumption for the experiments presented in this paper (see Sec. II).

A. The population-propagation model

We consider a plane wave coming from vacuum impinging on the target. The target is initially a pure dielectric, with no electron in the conduction band. Our goal is to calculate the electric field $E(z, t)$ inside the target, taking into account the fact that the target gets ionized by this strong field. Once $E(z, t)$ is known, the reflectivity of the plasma can readily be calculated (see the Appendix).

To describe the field propagation, we use the quasistationary approximation, which consists in considering that the electric field at any point is harmonic in time, at the frequency of the external driving field. It is valid only if the temporal evolution of the dielectric function is slow on the time scale of the incident laser pulse optical cycle. If this is not the case, more sophisticated approaches are required [27].

Assuming that we are in this quasistationary regime, the propagation of an S -polarized electromagnetic wave, impinging on a medium defined by its dielectric function $\epsilon(z, t)$ (with $z > 0$), with an angle θ , is described by the Helmholtz equation [19]

$$\frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} [\epsilon(z, t) - \sin^2(\theta)] E(z, t) = 0, \quad (1)$$

where ω is the angular frequency of the incident pulse, and c is the speed of light in vacuum. $\epsilon(z, t)$ is the dielectric function of the plasma and is given by the Drude model:

$$\epsilon(z,t) = n_1^2 - \frac{e^2 N(z,t)}{\epsilon_0 m^* (\omega^2 - i\omega/\tau)}. \quad (2)$$

n_1 is the initial refractive index of the solid, e is the electron charge, m^* its effective mass, and ϵ_0 is the vacuum permittivity. τ is the mean electron collision time, and is assumed to be a constant (e.g., independent of the electronic temperature) in this model. We will see that this approximation is satisfactory up to a certain fluence, above which the plasma gets too hot and expands too much during the laser pulse to consider τ as a constant. $N(z,t)$ is the instantaneous conduction electron density at point z . Its varies in time because of the nonlinear excitation of the dielectric by the high-intensity incident laser pulse. This in turn results in a time dependence of the dielectric constant $\epsilon(z,t)$. $N(z,t)$ also depends on z because once some electrons are in the conduction band, they can absorb some energy from the incident field since the collision time $\tau \neq 0$. The laser field in the dielectric thus becomes inhomogeneous, and so is the excitation density.

Before the main laser pulse, the conduction electron density is assumed to be zero: $N(z,t=0)=0$. Its temporal evolution is then given by a rate equation:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = W(N_0 - N), \quad (3)$$

where W is the electron excitation rate from the valence band to the conduction band, and N_0 is the bound electron density. We have considered that the excitation is both due to multiphoton absorption and electronic avalanche [21,22], with W given by

$$W = \sigma_n |E(z,t)|^{2n} + \beta \frac{N}{N_0} |E(z,t)|^2. \quad (4)$$

n is the minimum number of photons required to cross the band gap and σ_n is the corresponding cross section. A band gap of about 10 eV for quartz and a photon energy of 1.57 eV leads to $n=6$. Using a tunneling excitation law instead of a multiphotonic mechanism gives very close results [28].

The technique used to solve the coupled system of equations (1) and (3) is described in the Appendix A.

Figure 9 shows the instantaneous conduction electron density $N(z,t)$ in the target, obtained with this model, as a function of z , for various times in the rising edge of a 50 J/cm² pulse. The laser pulse duration is 60 fs, but these profiles vary very little with the pulse duration within this model. At early times, the absorption of the laser beam is weak and therefore the target is homogeneously excited on a micron length scale. As intensity increases, the excitation of the target gets higher. This implies that the laser pulse gets attenuated as it penetrates in the target, which leads to an inhomogeneous excitation. When the critical density is overcome, this inhomogeneity gets even stronger, since the laser field does not penetrate further than the skin depth. As can be seen in Fig. 9, at the maximum of the pulse, the excitation density near the surface varies by two orders of magnitude over a distance of about 200 nm only, i.e., smaller than the wavelength of the incident radiation. This is why the WKB

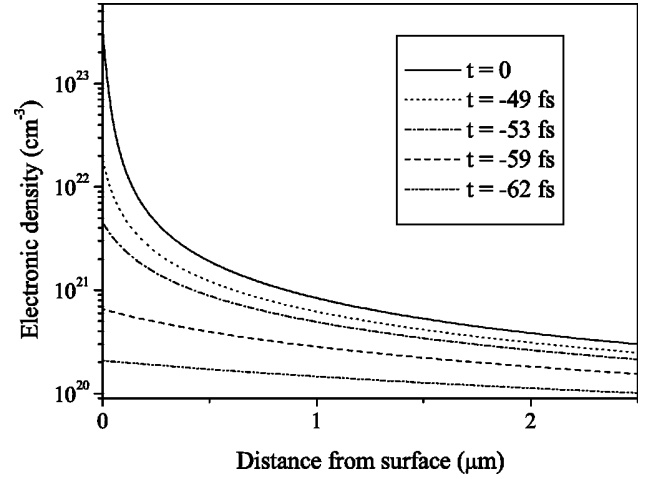


FIG. 9. Spatial profile of the instantaneous conduction electron density $N(z,t)$ in the target, along the beam propagation direction z , at different times in the rising edge of a 50 J/cm², 60 fs pulse. $t=0$ corresponds to the peak of the pulse.

approximation or the Fresnel equation cannot be used to calculate the field propagation in the target and the reflection coefficient: to evaluate these quantities properly, the Helmholtz equation has to be solved [19].

Figures 2 and 3 compare the measured fluence dependences of the peak and overall reflectivities with the ones calculated with this model, for a 60 fs laser pulse. Figure 4 shows the same comparison for the overall reflectivity of a 4 ps pulse. The set of parameters used for these calculations is shown in Table I. In all cases, the agreement is very satisfactory. This shows that this simple model, with the set of parameters given in Table I, is adequate to calculate the reflectivity of the PM in a broad range of pulse duration and fluence.

We note that the avalanche coefficient β we have obtained (Table I) is the same as the one deduced from optical breakdown threshold measurements in silica [21,22]. The mean electron collision time τ is in reasonable agreement with the hot electron-acoustic phonon collision times in wide band-gap dielectrics [29,30]. It also has the typical order of magnitude of electron-ion collision times in near-solid-density plasmas at electronic temperatures between 10 and 100 eV [31]. An electron density of 5×10^{23} cm⁻³ approximately corresponds to what would be obtained by ionizing all the electrons except the 1s and 2s of Si and the 1s of O. Given the ionization potentials of these states (>500 eV), this is a realistic value for N_0 . The electron effective mass m^* had little influence on the results of the simulations within this model, and was taken to be the free electron mass.

TABLE I. Set of parameters used in the population-propagation model to fit the reflectivity curves of Figs. 2–4.

σ_6 (cm ¹² s ⁵)	β (cm ² /J)	τ (fs)	N_0 (cm ⁻³)
2.3×10^{-178}	11	0.1	5×10^{23}

B. The hydrodynamic model

In order to describe the PM response in the high-intensity regime or for longer interaction times, we need a hydrodynamic simulation, which describes the plasma expansion, and accounts for multionized atomic states and collisional processes in the high temperature plasma. We use FILM, a standard one-dimensional Lagrangian fluid code [20,32]. This code solves fluid equations associated with conservation of energy, momentum, and mass. The electronic thermal conductivity is also included in this code. To close the system of hydrodynamic equations, an equation of state derived from the SESAME library [33] is used. This equation of state provides the temperature, pressure, mean ionization (Z) and electron density for each internal energy and mass density. Knowing the temperature and density, the elastic electron-ion collision frequency is deduced from the model of Lee and More [31], which converges to the Spitzer results for high temperatures [34]. To compute the energy source due to the laser field, the Helmholtz equation is solved as in the simple model previously described, now taking into account the electron-ion collisions to calculate the collision rate.

FILM is not suited to describe the first stage of the excitation, where the mean ionization is low and the target is closer to a solid than to a plasma. We have modified the code to describe this stage and the transition to a plasma. Thus, for $Z < 1$, we are using a modified equation of state: in this regime, the internal energy is assumed to be equal to the electron density multiplied by the band-gap energy plus an effective electron thermal energy. This last contribution is a small fraction of the band gap. To account for multiphoton ionization (not included in FILM), which is the dominant process at low electron density, multiphoton absorption is included as an energy source in the energy equation. The electron-phonon collision frequency is used in the Drude equation (2), to calculate the dielectric constant (and therefore the field and the collisional absorption). In order to get a soft transition between the high and low excitation density regimes, the two equations of state are interpolated for $1 < Z < 2$ and the electron-phonon collision frequency is assumed to be proportional to $(1 - Z)$, for $Z < 1$. Numerical tests show that the results are insensitive to the details of the interpolation.

The upper graph in Fig. 10 shows the instantaneous reflectivity at time t obtained from this model, as a function of the total energy that has impinged on the target up to time t , for three pulse durations. Since fluence is the relevant physical parameter for the PM, this x scale is well suited to compare the temporal evolutions obtained for a wide range of incident pulse duration. The lower graph shows the corresponding plasma temperatures. Since we are interested in the effects on the reflectivity, these temperatures were taken at the point where the electronic density is equal to the critical density. Once the plasma mirror has triggered, temperatures typically between 10 and 100 eV are reached in the plasma.

In all cases, a rapid increase of the reflectivity is observed when the critical density is overcome, followed by a plateau. This plateau corresponds to a reflectivity of $\approx 65\%$ only,

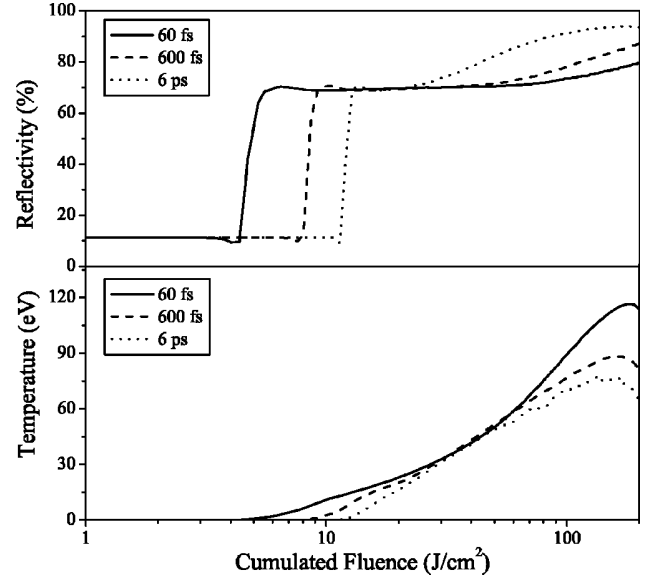


FIG. 10. Upper graph: instantaneous reflectivity as a function of the cumulated fluence for several pulse durations, as obtained from the hydrodynamic model. The total fluence of the incident pulse is 200 J/cm^2 in all cases. Lower graph: corresponding plasma temperatures at the critical density.

because of the high collision rate ($1/\tau \approx 10 \text{ fs}^{-1}$) in the plasma. This fast increase of the reflectivity and the following plateau imply that the PM acts almost like a high-pass filter with respect to fluence: in a certain fluence range above the triggering threshold, the laser field is reflected with an almost constant reflectivity. The advantages of this feature will appear in the following discussion (Sec. V). The fast increase of the instantaneous reflectivity seen in Fig. 10 is not in contradiction with the smooth dependence of the reflectivity measured experimentally (Figs. 2–4): this smooth dependence is essentially due to the triggering of the PM at earlier times and over larger areas as the incident fluence increases.

In the case of the 60 fs pulse, the reflectivity starts to increase again in the second-half of the pulse (cumulated fluence $> 100 \text{ J/cm}^2$): this is due to the increase of the electron temperature (see lower graph), which leads to a reduction of the electron-ion collision rate. For ps pulses, the reflectivity increase occurs at lower fluences, corresponding to lower temperatures: in this case, it is mostly due to the expansion of the plasma during the laser pulse, which leads to a decrease of the plasma density and hence of the electron-ion collision rate.

The population-propagation model described previously gives very similar curves, except for the late increase in reflectivity, which can obviously not be described by this simple model.

Figure 8 compares the measured temporal evolution of the reflected beam phase at different fluences with the results obtained with this model. A very good agreement is obtained at all fluences without changing any parameter in the calculation. This model can therefore be used to calculate the phase shift induced by the PM on the reflected beam. As

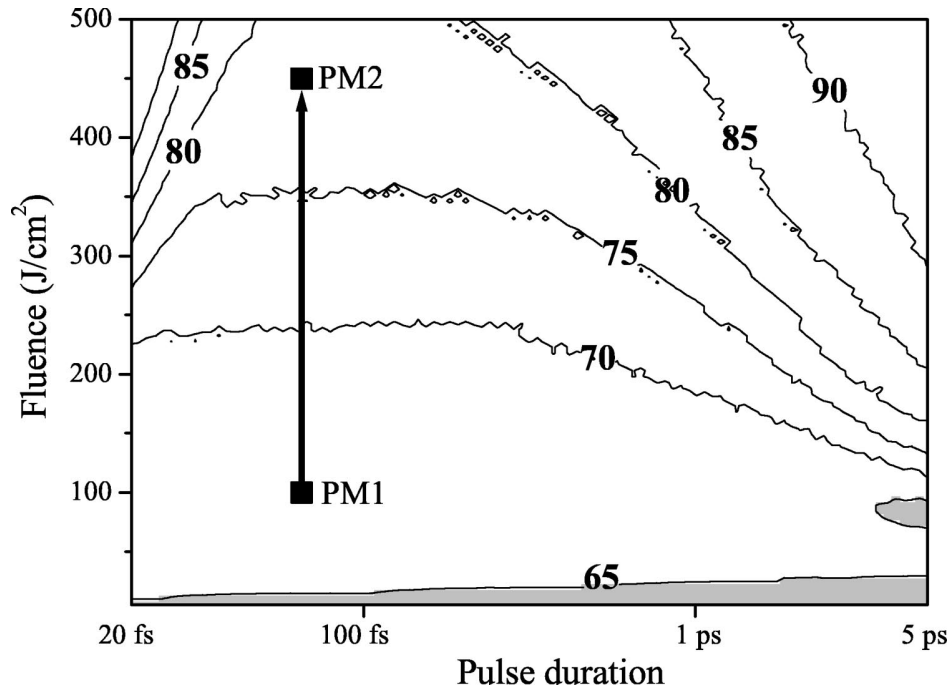


FIG. 11. Reflectivity of the PM at the maximum of the laser pulse, as a function of the duration and fluence of the incident pulse. The area where the PM can be considered to trigger (reflectivity $> 65\%$) appears in white. The two points PM1 and PM2 show the typical fluences that could be used in a two-PM system, allowing contrast improvements by several 10^4 .

mentioned earlier, it shows that this phase shift originates mostly from the motion of the critical density surface due to the plasma expansion in vacuum. The curves in Fig. 8 show that the plasma only starts to expand after a time t_e , which not surprisingly decreases as the incident fluence increases. After time t_e , it expands with a constant velocity, which is found to be 3×10^7 cm/s for a fluence of 50 J/cm 2 , in good agreement with previous experiments [35].

V. DISCUSSION

Our models have been validated by comparison with our experimental data: we can now use them to assess the performances of the PM, and determine its optimal operational fluence as a function of the incident pulse duration.

This optimal fluence is determined by a trade-off between the following constraints: (1) the reflectivity of the PM should be as high as possible at the maximum of the laser pulse; (2) the PM should not distort the beam wave front too much; (3) for an optimal improvement of the contrast, the PM should trigger only in the rising edge of the main pulse. If the triggering does not occur too early in the rising edge, a steepening of this edge can even be induced by the PM (see Fig. 6), which can be highly desirable for some experiments.

Given these constraints, the optimal fluence can be chosen with the help of Figs. 11 and 12, obtained with the models previously described. These figures, respectively, show the reflectivity R of the PM at the spatial and temporal maximum of the laser pulse, and the phase shift it induces at the end of the laser pulse, as a function of the duration and fluence of the incident pulse. In Fig. 11, the gray area indicates the range of parameters where the PM does not trigger. This area

was arbitrarily defined by the threshold $R < 65\%$. The exact value chosen for this threshold does not matter because the reflectivity varies very strongly with the fluence when $R \lesssim 65\%$. The triggering fluence threshold is almost independent of the pulse duration, as observed experimentally. The gray area on the phase map (Fig. 12) corresponds to an induced phase shift higher than 1 rad ($\approx \lambda/6$), i.e., to a significant distortion of the beam wave front (since this phase shift goes to 0 on the edges of the beam).

Several regimes can be distinguished on the reflectivity map. For pulses shorter than ≈ 600 fs and fluences between the triggering threshold and ≈ 300 – 500 J/cm 2 (depending on the pulse duration), the reflectivity is remarkably insensitive to the fluence, and is $\approx 70\%$. This weak dependence is due to the fact that in this range (1) the plasma is extremely overdense whatever the fluence, (2) the collision rate hardly varies with temperature ($T \approx 10$ – 100 eV) [31] and hence with fluence, and (3) the pulse is short enough to neglect the plasma expansion (see Fig. 12). In this regime, the PM is very robust against shot-to-shot fluctuations and spatial inhomogeneities of the fluence, at the expense of an energy loss of $\approx 30\%$ at the peak of the pulse. In the same duration range, higher efficiencies of $\approx 85\%$ can be obtained by using higher incident fluences, at the expense of robustness: the PM then enters a new regime, where the reflectivity again increases with the fluence, because of the heating of the plasma and the resulting decrease of the collision rate. Figure 12 shows that in this short pulse duration range, the PM hardly induces any distortion of the beam wave front even at the highest fluences considered here, because the plasma does not have time to expand during the main laser pulse.

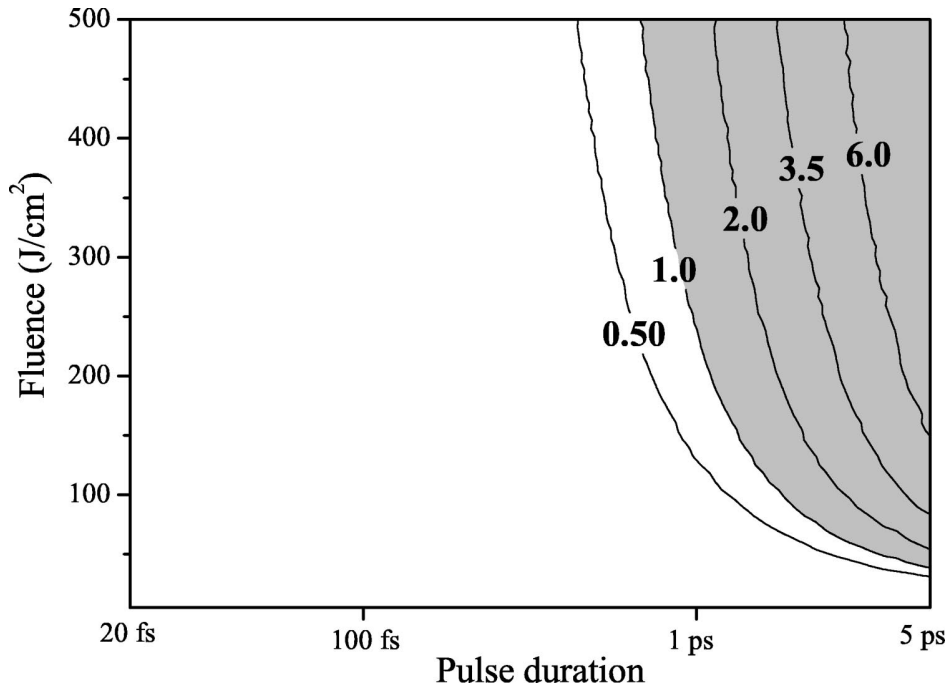


FIG. 12. Phase shift of the reflected field at the end of the laser pulse (1.5 FWHM after the maximum of the pulse), as a function of the duration and fluence of the incident pulse. In the gray area, the PM induces a significant distortion (> 1 rad) of the beam wave front.

For pulses longer than ≈ 1 ps, the robust reflectivity regime shrinks. Higher reflectivities can be reached at lower fluences because the plasma expansion has already started at the maximum of the pulse. However, the PM is less robust against fluence variations since the fluence dependence of the reflectivity is stronger. Moreover, the operational fluence range (between the gray area in Fig. 11 and the one in Fig. 12) is of course reduced because of this expansion. For pulses longer than ≈ 5 ps, the PM becomes inadequate since a distortion of the wave front cannot be avoided as soon as the PM triggers.

These two maps can be used to design a PM system suited to a particular high-power laser system, provided the initial temporal contrast of the laser is known. This last information is required to ensure that the PM triggers only in the rising edge of the main pulse: the initial contrast determines the maximum main pulse fluence that can be used on the PM. For fluences higher than this limit, the pedestal or prepulses will trigger the PM. In this case, the contrast improvement will not be optimal, and a strong distortion of the main beam wave front might be induced because of the longer time available for the plasma to expand. With typical contrast of 10^6 on a ns time scale and 10^4 on a ps time scale, this maximum fluence will typically be of the order of 100 J/cm^2 (point PM1 in Fig. 11). As we have seen, an antireflection coated PM used at this fluence leads to an improvement of the contrast by a few 10^2 . Depending on the initial contrast, this might not be enough for some high-field experiments, and a second PM might be required to increase the contrast even more [5]. This second mirror can be used at a higher fluence (point PM2 in Fig. 11), since it is triggered by a pulse with a higher contrast. Such a system with two PMs made of

antireflection coated plates can lead to an improvement of the contrast by several 10^4 .

These two PMs can be implemented in several ways for an actual high-field experiment.

One possibility is to insert them between the target and the short focal length optics used to focus the beam on the target. Such a setup is compact, but is not very flexible and can be challenging to implement. The PMs act in the intermediate field: to avoid severe distortions of the focal spot, one has to be especially careful with the phase and amplitude distortions they might induce. This implies that both PMs should be used in the white area of the phase map, and in the robust regime, where the reflectivity weakly depends on the fluence.

Another possibility is to implement the PMs before the optics that focuses the beam on the target, by inserting them in a long focal length $2f$ line (such as in a spatial filter). The first PM would be located before the focal point of this spatial filter, while the second one would be at the focus. The constraints on the phase and amplitude distortions induced by the second PM are then less severe, since the beam reflected from this mirror will be imaged on the target. Like in our experiment (see Sec. III B), this PM would both act as a temporal and a spatial filter. If the phase distortion induced by this mirror really gets strong, a part of the beam might not be collected by the second optics of the $2f$ line, which would lead to energy losses.

VI. CONCLUSION

We have carried out a detailed experimental study of a plasma mirror temporal filter, aimed at improving the tempo-

ral contrast of high-power ultrashort laser pulses. Besides standard reflectivity measurements, an original method [25] based on the use of chirped laser pulses has allowed us to identify, in a single shot and on a ps time scale, the stages of the construction of a plasma mirror, from the ionization of the target to the plasma expansion in vacuum. This expansion in vacuum has very important practical consequences, since it might lead to distortions of the reflected beam wave front and prevent a good subsequent focusing. Our diagnostic is thus particularly relevant to determine the upper fluence limit for the plasma mirror to work properly.

We have used our experimental results as an accurate benchmark test to validate numerical models of the plasma mirror. These models can then be used to find the optimal working conditions for the plasma mirror, for fs to ps pulses. An essential result of this theoretical study is that the peak plasma mirror reflectivity is hardly influenced by the incident fluence between a few J/cm² and a few hundreds of J/cm², for pulse durations ranging from a few tens to several hundreds of fs. The plasma mirror is thus very robust against shot-to-shot energy fluctuations, and does not accentuate the possible spatial inhomogeneities of the laser beam. The longest pulse duration that can be handled with a plasma mirror was found to be about 5 ps: beyond this duration, severe distortions of the beam wave front due to the plasma expansion become unavoidable.

Lastly, our measurements have shown that using an anti-reflection coated dielectric as a target makes it possible to increase the temporal contrast by several 10² with a single plasma mirror. Using two plasma mirrors in series should lead to temporal contrasts as high as 10¹⁰–10¹¹ on a ns time scale, and 10⁷–10⁸ on a ps time scale. Such contrasts open the route to a whole range of new ultrahigh intensity experiments.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was done under the hospice of the SHARP Contract No. HPRI-CT-2001-50037. P. d'Oliveira and P. Monot are strongly acknowledged for helpful discussions.

APPENDIX

In this appendix, we explain how to solve numerically the coupled equations (1) and (3), and we more particularly specify how to deal with the initial conditions on the electric field $E(z, t)$.

When a plane wave impinges (with an incidence angle taken to be 0 for simplicity) on a medium with a dielectric constant $\epsilon(z)$, a part of the field energy, given by the complex reflection coefficient r , will be reflected back in vacuum ($z < 0$), and thus produce standing waves on the vacuum side by interference with the incident beam. The continuity of the

electric field and its z derivative at the vacuum-target boundary leads to

$$E_0(1+r) = E(z=0^+), \quad (\text{A1a})$$

$$ik_0 E_0(1-r) = \frac{dE}{dz}(z=0^+). \quad (\text{A1b})$$

E_0 is the amplitude of the incoming electric field, and $k_0 = \omega/c$. For a strongly inhomogeneous medium such as the plasma mirror (see Fig. 9), the reflection coefficient r cannot be simply obtained from the Fresnel equations, and is therefore unknown. As a result, $E(z=0^+)$ and $dE/dz(z=0^+)$ cannot be calculated from Eqs. (A1), and we have no initial condition to solve the Helmholtz equation (1) in the $z > 0$ area.

A solution to this problem consists in solving the Helmholtz equation backward, i.e., from a region far inside the target, where the refractive index is constant in space, to the target surface. We then need an initial condition at a point $z=L$ in this region. Since the medium is almost homogeneous around this point, we know that the electric field is a plane wave propagating in the positive direction of the z axis. Only the magnitude A of this wave is unknown. We define $\psi(z, t)$ by $E(z, t) = A\psi(z, t)$ and $|\psi(z=L)| = 1$. The initial conditions on $\psi(z)$ at $z=L$ will thus be

$$\psi(z=L) = \exp(ik_1 L), \quad (\text{A2a})$$

$$\psi'(z=L) = ik_1 \exp(ik_1 L) \quad (\text{A2b})$$

with $\psi'(z) = d\psi/dz$ and $k_1 = n_1 \omega/c$. Moreover, $\psi(z)$ also obeys the Helmholtz equation since this equation is linear. $\psi(z)$ is thus calculated by solving the Helmholtz equation from $z=L$ to $z=0$. Once $\psi(z)$ is known, Eqs. (A1) can be combined to obtain the reflection coefficient

$$r = \frac{ik_0 \psi(z=0) - \psi'(z=0)}{ik_0 \psi(z=0) + \psi'(z=0)}. \quad (\text{A3})$$

The actual electric field $E(z, t)$ can then be deduced from $\psi(z, t)$ and the known amplitude of the incident electric field at the surface, using

$$A = E_0 \frac{1+r}{\psi(z=0)}. \quad (\text{A4})$$

The electric field is now completely determined at time t . We use its value to calculate the ionization rate W , and the excitation density $N(z)$ at time $t+dt$. Knowing $N(z, t+dt)$ we calculate the dielectric function using Eq. (2). $\epsilon(z, t+dt)$ can then be used in the Helmholtz equation (1), to determine electric field at time $t+dt$.

- [1] J.D. Bonlie *et al.*, Appl. Phys. B: Lasers Opt. **70**, S155 (2000).
- [2] D. Umstadter, Phys. Plasmas **8**, 1774 (2001).
- [3] D. Strickland and G. Mourou, Opt. Commun. **56**, 219 (1985).

- [4] V. Bagnoud and F. Salin, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **4**, 445 (1998).
- [5] I. Watts *et al.*, Phys. Rev. E **66**, 036409 (2002).

- [6] F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
- [7] M. Grimes, A. Rundquist, Y. Lee, and M. Downer, Phys. Rev. Lett. **82**, 4010 (1999).
- [8] M. Nantel *et al.*, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **4**, 449 (1998).
- [9] J. Itatani *et al.*, Opt. Commun. **148**, 70 (1998).
- [10] G. Chériaux *et al.*, Conference on Lasers and Electro-Optics, Postconference Technical Digest, 45 (2001).
- [11] I. Jovanovic *et al.*, Appl. Opt. **41**, 2923 (2002).
- [12] H.C. Kapteyn, M. Murnane, A. Skoze, and R.W. Falcone, Opt. Lett. **16**, 490 (1991).
- [13] D.M. Gold, H. Nathel, P.R. Bolton, W.E. White, and L.D.V. Woerkom, Proc. SPIE **1413**, 41 (1991).
- [14] S. Backus *et al.*, Opt. Lett. **18**, 134 (1993).
- [15] D.M. Gold, Opt. Lett. **19**, 2006 (1994).
- [16] Z. Bor *et al.*, Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process. **60**, 365 (1995).
- [17] C. Ziener *et al.*, J. Appl. Phys. **A93**, 768 (2003).
- [18] J. Freidberg *et al.*, Phys. Rev. Lett. **28**, 795 (1971).
- [19] W.L. Kruer, *The Physics of Laser Plasma Interactions* (Addison-Wesley, Reading, MA, 1988).
- [20] J.-C. Gauthier, J.-P. Geindre, N. Grandjouan, and J. Virmont, J. Phys. D **15**, 32 (1983).
- [21] B. Stuart *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 2248 (1995).
- [22] B. Stuart *et al.*, Phys. Rev. B **55**, 5799 (1997).
- [23] M. Takeda, H. Ina, and S.J. Kobayashi, J. Opt. Soc. Am. **72**, 156 (1982).
- [24] A. Benuzzi-Mounaix *et al.*, Phys. Rev. E **60**, R2488 (1999).
- [25] J.-P. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo, and J.-C. Gauthier, Opt. Lett. **26**, 1612 (2001).
- [26] F. Quéré *et al.*, Europhys. Lett. **56**, 138 (2001).
- [27] M. Geissler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 2930 (1999).
- [28] E.J. Jarque, V. Malyshev, and L. Roso, J. Mod. Opt. **44**, 563 (1997).
- [29] M. Fischetti *et al.*, Phys. Rev. B **31**, 8124 (1985).
- [30] E. Cartier and F.R. McFeely, Phys. Rev. B **44**, 10 689 (1991).
- [31] Y.T. Lee and R.M. More, Phys. Fluids **27**, 1273 (1984).
- [32] J.F. Luciani, P. Mora, and J. Virmont, Phys. Rev. Lett. **116**, 237 (1986).
- [33] Los Alamos National Laboratory, Technical Report No. LA-UR-92-3407, edited by S.P. Lyon and J.D. Johnson, 1992 (unpublished).
- [34] L. Spitzer, *Physics of Fully Ionized Gases*, 2nd ed. (Interscience, New York, 1962).
- [35] B.T.V. Vu, A. Skoze, and O.L. Landen, Phys. Rev. Lett. **72**, 3823 (1994).

Coherent Wake Emission of High-Order Harmonics from Overdense Plasmas

F. Quéré, C. Thaur, P. Monot, S. Dobosz, and Ph. Martin

*Service des Photons, Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, DSM/DRECAM, CEN Saclay,
91191 Gif sur Yvette, France*

J.-P. Geindre and P. Audebert

*Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, UMR 7605-CNRS-CEA-Ecole Polytechnique-Université Paris VI,
F91128 Palaiseau, France*

(Received 9 January 2006; published 30 March 2006)

We present a new mechanism for high-order harmonic generation by reflection of a laser beam from an overdense plasma, efficient even at moderate laser intensities (down to $I\lambda^2 \approx 4 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$). In this mechanism, a transient phase matching between the electromagnetic field and plasma oscillations within a density gradient leads to the emission of harmonics up to the plasma frequency. These plasma oscillations are periodically excited in the wake of attosecond electron bunches which sweep across the density gradient. This process leads to a train of unevenly spaced chirped attosecond pulses and, hence, to broadened and chirped harmonics. This last effect is confirmed experimentally.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.96.125004](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.125004)

PACS numbers: 52.38.Kd, 42.65.Ky

High-order harmonic generation (HHG) by reflection of an intense laser beam from an overdense plasma has been observed with very different types of lasers, from nanosecond CO_2 lasers to picosecond (ps) Nd-glass and femtosecond (fs) Ti-Sa lasers ([1–6], and references therein). Two strong motivations drive these studies. First, this is a possible path to generate energetic subpicosecond short-wavelength light pulses, which are of high interest for many research fields. Second, studying the properties of these harmonics should provide new insight into the dynamics of high-intensity laser-plasma interaction and, in particular, into the collective-absorption mechanisms leading to energetic electrons, which play a crucial role in effects such as incoherent x-ray emission, or ion acceleration from thin foils.

Most experiments on HHG from plasmas have so far been performed in, or very close to, the so-called relativistic intensity regime $I\lambda^2 > 1.37 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$, where the quiver motion of electrons in the laser field is relativistic. In this regime, the most common interpretation for the short-pulse experiments is provided by the oscillating mirror (OM) model [7,8]: The intense laser field drives a relativistic oscillation of the plasma surface, which in turn gives rise to a periodic phase modulation of the reflected beam and, hence, to the generation of harmonics of the incident frequency.

In this Letter, we demonstrate both theoretically and experimentally that harmonics up to the plasma frequency of the target can also be generated through a totally different mechanism, which we call coherent wake emission (CWE), efficient well below the relativistic regime. This mechanism is associated with plasma-wake oscillations in a density gradient and turns out to be a remarkably universal source of radiation in plasmas; the same process has recently been identified as a way to generate intense terahertz (THz) pulses in inhomogeneous underdense plasmas

excited by a laser wake [9]. In the present case, CWE is driven by energetic electron bunches generated around the critical density and which sweep across the overdense plasma. The periodic repetition of this mechanism, every optical cycle, leads to a train of attosecond (asec) pulses and, thus, to a spectrum consisting of harmonics of the incident laser frequency and extending up to the extreme ultraviolet. The importance of plasma oscillations excited by fast electrons has been pointed out recently in the context of HHG from the rear side of thin foils [10].

Our study was motivated by a striking experimental fact. Focusing a few millijoules from a 50 fs 800 nm 1 TW Ti-Sa laser (LUCA laser, Saclay Laser Interaction Center) on a fused silica target, at 45° incidence and in p polarization, we observed harmonics in the specularly reflected beam up to orders 16–18 [Fig. 1(a)], even for intensities down to $I\lambda^2 = 4 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$. In this intensity range, more than 2 orders of magnitude below the relativistic interaction regime, the OM mechanism has an extremely low efficiency [8] and is, thus, very unlikely to be responsible for such high-order harmonics.

We have measured the intensities of harmonics 12–14 as a function of the laser intensity between $I\lambda^2 = 4 \times 10^{15}$ and $2 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$. The evolution of their efficiencies is presented in Fig. 1(b), which shows two essential features. First, these efficiencies vary very weakly with laser intensity ($\approx I^{0.4}$). Second, this intensity dependence is almost the same for all harmonics, which means that the harmonic spectrum hardly changes with intensity. Both observations are in contradiction with the OM mechanism [2,3,5], which predicts a highly nonlinear behavior in this intensity range. This definitely excludes this process in interpreting our observations.

To identify the generation mechanism, we have used the $1\frac{1}{2}$ -D relativistic particle-in-cell (PIC) code EUTERPE [11]. When simulating the interaction of a laser pulse at

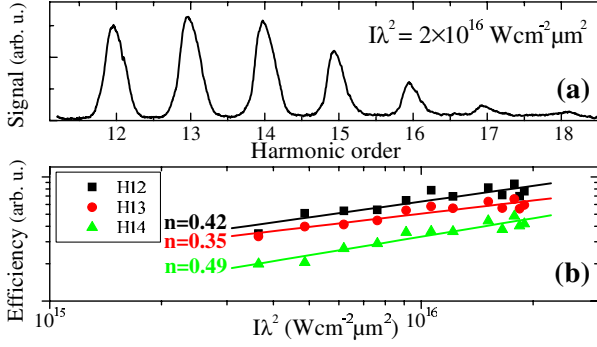


FIG. 1 (color online). (a) Typical raw harmonic spectrum; (b) conversion efficiency I_N/I_0 for harmonics 12–14 as a function of laser intensity. The solid lines are power-law fits, which exponents are given on the graph.

10^{16} – 10^{17} $\text{W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$ with a plasma of maximum density n_s , all harmonics up to the plasma frequency $\omega_p^s = (n_s e^2 / m \epsilon_0)^{0.5}$ are observed in the spectrum of the reflected beam, leading to a maximum harmonic order $N_{\text{max}} = (n_s / n_c)^{0.5}$, where n_c is the critical density for the laser wavelength λ . At these intensities, n_s is typically a few hundreds of n_c , and harmonic orders above 10 are therefore obtained, as in our experiment. Importantly, this HHG signal is obtained in the simulations only for oblique incidence and p polarization, as observed experimentally. Besides, it occurs only when a short density gradient is present at the surface of the plasma, with a typical scale length L between $\lambda/50$ and $\lambda/15$ at the intensities considered here. In the experiment, such a gradient most likely develops during the few ps preceding the main pulse, due to the rather high pedestal of the LUCA laser on the ps time scale ($\approx 10^{-4}$ at 5 ps and $\approx 10^{-3}$ at 1 ps).

We now analyze in detail the results of the PIC simulations to get a physical understanding of the generation mechanism. We first specifically choose the parameters of the simulation (e.g., the laser intensity) to show that, even close to the relativistic regime, the OM mechanism is clearly not the only process leading to harmonic emission. Figure 2 shows a plot of the electronic density along the target normal x , as a function of time. Also shown on this graph is the envelope of the magnetic field B_z corresponding to the superposition of harmonics 5–9, obtained by spectrally filtering $B_z(t)$ at each point of the spatial grid.

The emission of two separated asec pulses every optical cycle is observed on this graph. One of these pulses clearly originates from the laser-driven oscillations of the critical density surface; this corresponds to the OM generation process. The other asec pulse is generated in a much denser part of the plasma, where the laser pulse does not penetrate, and has to be attributed to a different mechanism. We note that the time spacing between these two pulses is not fixed and depends on the physical parameters. At lower intensities, such as those used in our experiment, the OM

contribution becomes absolutely negligible, and the HHG signal is largely dominated by this second class of asec pulses. In this regime, a detailed analysis shows that the N th harmonic is generated in the density gradient, around the point x where the local plasma frequency $\omega_p(x)$ is of the order of the harmonic frequency. This suggests that plasma oscillations play a crucial role in the generation of these asec pulses and raises two questions. (i) How are these high-frequency plasma oscillations excited? (ii) How do they emit a single asec pulse every optical cycle?

Our simulations reveal that plasma oscillations are induced in the wake of energetic *bunches* of electrons, consistent with Ref. [10]. The formation of these bunches is observed to occur around $n(x) = 4n_c$ and around a given phase within each optical cycle. In Fig. 2, we intentionally used a thin plasma foil, so that these bunches can be observed when they exit the plasma at the rear side of the foil (white arrows). This reveals that their duration is very small, typically on the hundred asec time scale. These short bunches impulsively excite plasma oscillations all along the gradient. Their density and the amplitude of the induced plasma-wake oscillations are typically of the order of n_c .

The mechanism for the formation of these electron bunches can also be inferred from the PIC simulations. Since the laser is p polarized, and we are in a regime where the quiver velocity in the laser field v_{osc} is such that $v_{\text{osc}}/c \gtrsim 2\pi L/\lambda$, some electrons are accelerated in the underdense part of the plasma by vacuum heating [12]. As can be seen in Figs. 1(c)–1(d) in Ref. [12], a portion of these energetic electrons naturally bunches temporally as it penetrates the overdense part of the plasma. In our simulations, this bunching is observed to occur in the density gradient, leading to the efficient excitation of plasma oscillations therein.

We now use a simple analytical model, analogous to the one used in Ref. [9] for THz pulses, to show how these plasma-wake oscillations in a density gradient can emit bursts of light. We focus on what occurs during a single

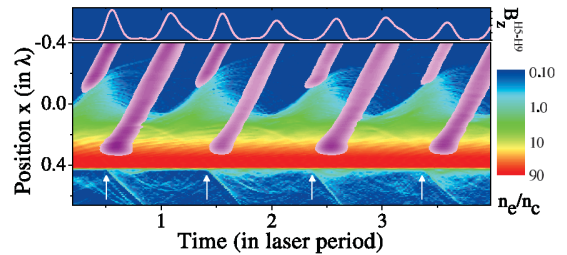


FIG. 2 (color). Electronic density in log scale and intensity of the generated asec pulses (purple color scale). The calculation was performed with an angle of incidence $\theta = 45^\circ$, $n_s = 80n_c$, $L = \lambda/15$, a foil thickness $d = \lambda/15$, and a constant intensity of 4×10^{17} $\text{W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$. The incident laser field propagates from negative to positive x . The upper panel shows the temporal profile of the asec pulses at $x = -0.4\lambda$.

optical cycle of the laser and assume for simplicity that the energetic electrons propagate along the target normal, with a constant velocity $v < c$. An electron bunch, originating from $(0, y)$, then reaches the point (x, y) in the plasma at time $t_0 = y \sin\theta/c + x/v$. This equation defines a line (or a plane in 3D), corresponding to a density wave constituted of the energetic electrons, that sweeps along the target surface with the same phase velocity $c/\sin\theta$ as the laser field and along the target normal with the velocity v of the individual electrons. This density wave, sketched in Fig. 3(a), triggers plasma oscillations in its wake, starting at $t = t_0(x, y)$ for any point (x, y) . In an exponential density gradient, where $n(x) \propto \exp(x/L)$ for $n \leq n_s$, the phase $\phi(x, y, t)$ of the resulting plasma-wake oscillations is thus given by

$$\phi(x, y, t) = \omega_p(x)[t - t_0] \propto e^{x/2L}[t - t_0(x, y)]. \quad (1)$$

Figure 3(a) shows the wave fronts of the resulting wake-field, at a given t . The wave vector of these plasma oscillations $\mathbf{k} = -\nabla\phi$ is a function of time and space, which is easily calculated using Eq. (1). This calculation shows that k_x cancels along a line given at time t by $y \sin\theta/c + x/v + 2L/v = t$. This line, also shown in Fig. 3(a) (dashed line), is parallel to the density wave but shifted in time by $2L/v$.

Along this line, the wave vector of the plasma-wake oscillations is $\mathbf{k} = (0, \omega_p(x) \sin\theta/c)$: This is precisely the *local* wave vector, around its turning point, of a light wave with frequency $\omega_p(x)$, emerging from the density gradient with an angle θ [13]. This local phase matching between the plasma oscillations and the electromagnetic waves leads to a light emission localized along this line, due to the associated stationary-phase point in the spatial integral giving the electromagnetic field emitted by the plasma. This is the CWE process. The emitted wave is then refracted as it propagates down the density gradient

and eventually emerges at an angle θ from the target normal, i.e., in the specular reflection direction.

More qualitatively, Fig. 3(a) shows that this emission line corresponds to the points where the wave fronts of the plasma oscillations bend and change direction. This bending occurs because plasma oscillations with increasing frequencies are excited at later times t_0 [i.e., in Eq. (1), ω_p increases with x , while $(t - t_0)$ decreases]. Physically, this is simply due to the electron bunch coming from the low density part of the gradient: The wave front bending, thus, directly derives from the geometry of the interaction and is bound to occur whatever the exact shape of the density gradient.

At the intensities considered in this Letter, v is of the order of a few $10^{-1}c$. It therefore takes the electron bunch a fraction of the laser optical cycle to cross the density gradient. CWE then occurs at a given delay $2L/v$ after the electron bunch has passed and lasts only for about one plasma oscillation period at each x ; light is, hence, emitted in the form of asec pulses. Because the different frequencies making up this pulse are generated at different points along the gradient, this asec pulse is chirped, just like the THz pulses emitted by CWE in underdense plasmas [9].

Figure 3(b) now shows the results of a PIC simulation over a little more than one wavelength of the laser field along the plasma surface. Instead of plotting the density as in Fig. 2, we plot the electric field E_x , which enables us to visualize the plasma oscillations with much less noise. The wave fronts of the magnetic field B_z associated to harmonics 7–13 are also shown: They clearly originate from the points where the wave fronts of the plasma oscillations bend. This fact, as well as the absolutely striking analogy between Figs. 3(a) and 3(b), unambiguously demonstrates that the asec pulses seen in the PIC code results are indeed generated by CWE.

CWE is a *linear* conversion process, which can to a certain extent be considered as the temporal reversal of resonance absorption [9]. Besides, the amplitude of the plasma-wake oscillations leading to CWE scales linearly with the charge of the driving electron bunches. In vacuum heating, this charge also scales linearly with the amplitude of the laser electric field. Within its range of validity, this generation mechanism thus has an essentially constant efficiency with laser intensity. In the PIC code results, it is typically of the order of 10^{-3} – 10^{-4} for harmonic 10. The weak variations observed experimentally [Fig. 1(b)] are most likely due to variations in the gradient scale length or ionization state of the plasma.

We now consider the temporal structure of the fs train of asec pulses generated during the whole laser pulse. According to the previous model, the time delay between the formation of the electron bunch at $n \approx 4n_c$ and the subsequent generation of an asec pulse of central frequency ω_N , occurring around $x_N = L \ln(\omega_N^2/4\omega_L^2)$, is given by $\beta L/v$, with $\beta = 2 + x_N/L$ and ω_L the laser angular fre-

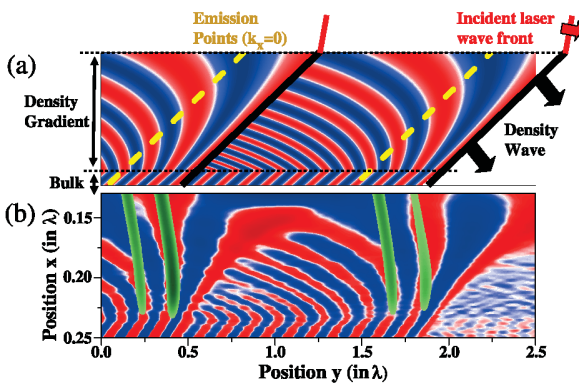


FIG. 3 (color). (a) Density wave sweeping across the density gradient and wave fronts of the resulting plasma-wake oscillations [i.e., contour lines of $\cos\phi(x, y)$]. (b) Wave fronts of E_x (blue and red) and of the frequency-filtered B_z (green), obtained from the PIC code for $I\lambda^2 = 10^{17} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$, $L = \lambda/40$, $\theta = 45^\circ$, $n_s = 180n_c$.

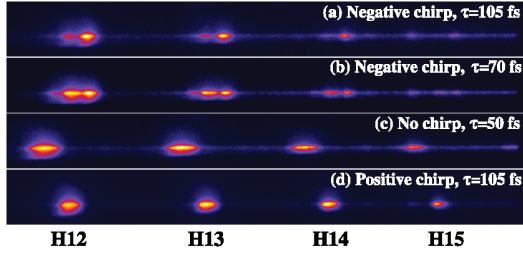


FIG. 4 (color). Normalized experimental spectral profiles of harmonics 12–15 for different chirps of the incident laser pulse. The laser energy was kept constant and corresponds to $I\lambda^2 = 3 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$ for a 50 fs pulse.

quency. Three factors can, thus, affect the emission time of the asec pulse: The phase of the laser field at the time of creation of the electron bunch, the gradient scale length L , and the electron velocity v . PIC simulations suggest that the first two factors change very little during the laser pulse. Neglecting their variations, and assuming that v varies as $v(t) \approx v_0(1 - t^2/\tau^2)$ around the pulse maximum, the time spacing between successive asec pulses is then given within the analytical model by $\Delta t = T_L[1 + 2\beta L t/v_0\tau^2]$. Hence, due to the changes in intensity during the fs laser pulse, this time spacing linearly increases during the laser pulse, in remarkable analogy with what occurs for HHG in gases [14].

Such an increasing time spacing results in a negative contribution to the chirp (i.e., blue precedes red) of the individual harmonics in the train spectrum [14], given for harmonic N by $d\omega_N/dt = -2\omega_N\beta L/v_0\tau^2$. We have, therefore, used the PIC code to calculate the chirp of the 7th harmonic generated by a 40 fs 800 nm laser pulse with $L = \lambda/30$, $n_s = 180n_c$, and $I\lambda^2 = 10^{17} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$, and indeed obtained a negative chirp $d\omega_N/dt = -0.02 \text{ PHz/fs}$. This is in excellent agreement with the value obtained from the previous formula, using the velocity $v_0 = c/3$ provided by the PIC code results.

As already demonstrated for HHG in gases [15], such a negative chirp of the individual harmonics can be compensated by using a laser pulse with a positive chirp $d\omega_L/dt$ for the generation, such that $Nd\omega_L/dt \approx -d\omega_N/dt$. Spectrally, this compensation, either complete or partial, leads to a narrowing of the harmonics. To test the above predictions experimentally, we have therefore measured HHG spectra for different chirps of the incident pulse (Fig. 4): Compared to the Fourier-transform limited case [Fig. 4(c)], a clear narrowing of the harmonic peaks occurs for the positive chirp [Fig. 4(d)], while the harmonics are even broader for a negative chirp of the same magnitude [Fig. 4(a)]. Spectral shifts are also observed: Although this can be expected, they are difficult to predict quantitatively,

since they depend on how the density gradient and its temporal dynamics evolve with the pulse duration and intensity. From these results, the chirp of these harmonics can be estimated to be of the order of 10^{-2} PHz/fs for a 50 fs laser pulse at $3 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$. Both the sign and the order of magnitude of this chirp are consistent with the results of the PIC simulations. This is strong evidence that the harmonics observed in our experiment are indeed produced by the CWE mechanism, triggered by laser-generated asec electron bunches.

In conclusion, we have demonstrated theoretically and experimentally that high-order harmonics can be generated at moderate laser intensities in solid-density plasmas through coherent wake emission, a process due to the coherent excitation of plasma oscillations of increasing frequencies with an increasing phase delay. Besides its fundamental interest, given the fairly high efficiency predicted ($\approx 10^{-4}$), CWE also appears as a good candidate to obtain intense asec or fs light pulses in the 40–80 nm range, by using high-energy (≈ 0.1 –1 J) laser pulses with a loose focus and typical intensities of $I\lambda^2 = 10^{16}$ – $10^{17} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$. The efficiency could be increased by optimizing the density gradient, to maximize the electron bunches density as well as the conversion from plasma oscillations to electromagnetic radiation.

We gratefully acknowledge the LUCA laser team for their precious help on the experiment, as well as G. Doumy, P. Salières, Y. Mairesse, and R. Marjoribanks for helpful discussions.

-
- [1] D. von der Linde *et al.*, Phys. Rev. A **52**, R25 (1995).
 - [2] P. A. Norreys *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 1832 (1996).
 - [3] M. Zepf *et al.*, Phys. Rev. E **58**, R5253 (1998).
 - [4] A. Tarasevitch *et al.*, Phys. Rev. A **62**, 023816 (2000).
 - [5] U. Teubner *et al.*, Phys. Rev. A **67**, 013816 (2003).
 - [6] P. Monot *et al.*, Opt. Lett. **29**, 893 (2004).
 - [7] S. V. Bulanov, N. M. Naumova, and F. Pegoraro, Phys. Plasmas **1**, 745 (1994).
 - [8] R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, Phys. Plasmas **3**, 3425 (1996).
 - [9] Z.-M. Sheng, K. Mima, J. Zhang, and H. Sanuki, Phys. Rev. Lett. **94**, 095003 (2005); Z.-M. Sheng, K. Mima, and J. Zhang, Phys. Plasmas **12**, 123103 (2005).
 - [10] U. Teubner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 185001 (2004); K. Eidmann *et al.*, Phys. Rev. E **72**, 036413 (2005).
 - [11] G. Bonnaud and G. Reisse, Nucl. Fusion **26**, 633 (1986).
 - [12] F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
 - [13] W. L. Kruer, *The Physics of Laser Plasma Interactions* (Addison-Wesley, Reading, MA, 1988).
 - [14] K. Varju *et al.*, J. Mod. Opt. **52**, 379 (2005).
 - [15] J. Mauritsson *et al.*, Phys. Rev. A **70**, 021801(R) (2004).

Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics

C. THAURY¹, F. QUÉRÉ^{1*}, J.-P. GEINDRE², A. LEVY¹, T. CECCOTTI¹, P. MONOT¹, M. BOUGEARD¹,
F. RÉAU¹, P. D'OLIVEIRA¹, P. AUDEBERT², R. MARJORIBANKS³ AND PH. MARTIN¹

¹Service des Photons, Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, DSM/DRECAM, CEN Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

²Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, CNRS, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

³Department of Physics and Institute for Optical Sciences, University of Toronto, 60 St George Street, Toronto, Ontario M5S 1A7, Canada

*e-mail: fabien.quere@cea.fr

Published online: 15 April 2007; doi:10.1038/nphys595

Specular reflection is one of the most fundamental processes of optics. At moderate light intensities generated by conventional light sources this process is well understood. But at those capable of being produced by modern ultrahigh-intensity lasers, many new and potentially useful phenomena arise. When a pulse from such a laser hits an optically polished surface, it generates a dense plasma that itself acts as a mirror, known as a plasma mirror (PM). PMs do not just reflect the remainder of the incident beam, but can act as active optical elements. Using a set of three consecutive PMs in different regimes, we significantly improve the temporal contrast of femtosecond pulses, and demonstrate that high-order harmonics of the laser frequency can be generated through two distinct mechanisms. A better understanding of these processes should aid the development of laser-driven attosecond sources for use in fields from materials science to molecular biology.

Although plasmas are generally considered as unstable and hardly controllable media, during an ultrashort laser pulse—typically below 100 fs—this plasma only expands by a small fraction of the light wavelength, and thus behaves as a high-flatness mirror, leading to high-intensity specular reflection. Such a plasma mirror (PM) can be considered as one of the testbeds of high-intensity laser–plasma interaction physics, in particular because it avoids the complications associated with the nonlinear propagation of the intense laser light in a plasma.

Besides this fundamental interest, the potential of PMs as active high-intensity optical elements has long been recognized^{1–3}. For instance, given the large change in reflectivity that occurs when an initially solid target is ionized and converted into a plasma, PMs can be used as laser-triggered ultrafast optical switches. This has been applied to shorten nanosecond pulses from CO₂ lasers down to the 100 fs range¹, to produce a time gate for the temporal characterization of ultrashort pulses², or, as we will illustrate in this paper, to improve the temporal contrast of ultrashort laser pulses^{3–5}.

In the past decade, research has been concentrated on the use of PMs in the relativistic interaction regime—that is, above a few 10^{18} W cm^{−2} at visible wavelengths, where the quivering motion of electrons in the laser field involves velocities of the order of the speed of light⁶. In this regime, PMs can be driven in a highly nonlinear regime, leading to the generation of very high-order harmonics of the incident light in the spectrum of the reflected beam, up to the extreme-ultraviolet and X-ray spectral ranges⁷. Theoretical studies predict that these harmonics are associated with intense trains of attosecond or even zeptosecond pulses^{8,9}, whereas isolated attosecond bursts are expected if intense few-cycle-long laser pulses are used^{10–12}. This process seems to be the most promising alternative to high-order harmonic generation (HHG) in gases¹³ to obtain attosecond pulses with higher pulse and photon energies¹¹—a crucial step for the development of attosecond science. These theoretical predictions nevertheless remain to be validated experimentally.

However, applications as well as thorough experimental studies of PMs in the ultrahigh intensity regime have so far been hindered by the main weakness of ultraintense lasers, which is their temporal pedestal. When the main pulse intensity exceeds 10^{17} – 10^{18} W cm^{−2}, the nanosecond light background surrounding this pulse, although typically 10^6 – 10^8 times weaker, is intense enough to strongly ionize any solid target well before the main pulse. Because of the subsequent expansion of the resulting plasma, the main pulse, as short as it may be, ends up interacting with a long plasma density gradient, and no specular reflection is observed.

Here, we use a fully engineered double-plasma-mirror (DPM) set-up as an ultrafast high-dynamics optical switch to improve the temporal contrast by four orders of magnitude. The resulting high-contrast pulses are then used to reveal the basic mechanisms of HHG in the specular reflection of a PM driven at ultrahigh intensities, up to the relativistic regime. By using PMs in the role of both optical elements and objects of proper study, this paper demonstrates their dual fundamental and applied interest.

OPTICAL SWITCHING: FROM BASIC PHYSICS TO ENGINEERING

The temporal contrast of high-power lasers can be dramatically improved by using a surprisingly simple method, which consists of reflecting the laser beam on a dielectric target with an initially low reflectivity³. For an appropriate choice of beam focusing, the temporal pedestal is not intense enough to significantly affect this target, whereas the much more intense main laser pulse induces a strong ionization, through nonlinear excitation processes. A plasma is thus created within some femtoseconds at the rising edge of the main pulse. The target reflectivity strongly increases when this plasma becomes dense enough to screen the incident laser field, that is, when the electron density, n , exceeds the critical density, $n_c = m\epsilon_0\omega_L^2/e^2$, characteristic of the laser frequency, ω_L , where e and m are the electron charge and mass and ϵ_0 is the vacuum dielectric constant. For an 800 nm laser wavelength and a sub-100 fs laser pulse, this typically requires intensities of a few 10^{14} W cm^{−2}.

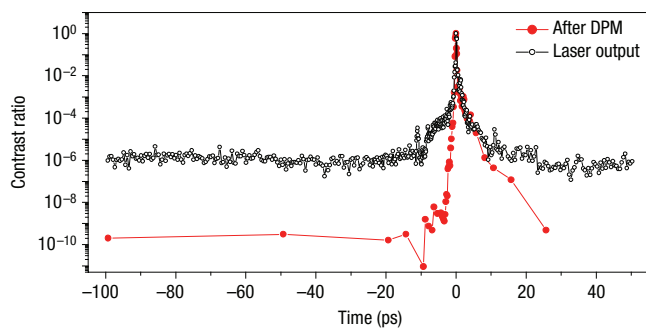


Figure 1 Temporal profile of the laser pulses delivered by a 10 TW, 60 fs laser system, in logarithmic scale, with and without the DPM. The signal at time 0 is set to 1 in both cases for an easier comparison between the two curves.

In these conditions, the final result is a contrast enhancement ahead of the main pulse, with a magnitude that simply depends on the ratio of the plasma and initial target reflectivities.

To maximize the plasma reflectivity, the laser beam should be *s*-polarized—that is, with its electric field along the target's surface. The only source of absorption of laser energy by the plasma is then inverse Bremsstrahlung due to electron–ion collisions, and the final reflectivity, R_f , thus reaches about 70%. Using an antireflection-coated optical flat glass, with a typical reflectivity $R_i \approx 0.3\%$, a contrast improvement, R_f/R_i , of about two orders of magnitude is achieved¹⁴.

Building on the comprehensive understanding of optical switching from PMs that has been achieved over the past few years^{4,5,15}, we have designed and permanently installed a DPM system at the output of the CEA-Saclay 10 TW, 60 fs Ti–Sa laser (see the Methods section and Supplementary Information, Fig. S1). The impact of this DPM is quantified in Fig. 1a: a high-dynamic-range ($\approx 10^{12}$) third-order autocorrelation¹⁶ trace shows the temporal profile of the laser pulses obtained with and without this DPM. As expected, a contrast improvement of about four orders of magnitude is observed, producing pulse contrasts of 10^{10} for times up to $t = -10$ ps. This is one of the highest temporal contrasts achieved so far at a multi-TW power level¹⁷.

The pedestal following the main pulse is also strongly decreased within a few picoseconds after the peak, owing to the hydrodynamics expansion of the plasma on the 10 ps timescale, which leads to its diffuse reflection by the PMs. However, this expansion is negligible on the 100 fs timescale, and hence the quality of the laser focal spot is not degraded by this DPM (see Supplementary Information, Fig. S2), which is an essential requirement for the applicability of this technique. As expected, the total reflectivity is measured to be about 50% for the main laser pulse.

This plasma-based technique can be easily implemented at the output of any laser chain, scaled to arbitrarily high laser powers, and cascaded in N stages, to gain $2N$ orders of magnitude in temporal contrast at a repetition rate of up to 1 Hz. It should thus become a crucial tool to routinely and practicably achieve the extreme temporal contrasts required for well-defined ultrahigh-intensity experiments on solid targets.

HHG FROM PLASMA MIRRORS

When PMs are driven in *s*-polarization and at moderate intensities, as in the previous application, the laser-driven dynamics is mostly along the target surface, and thus plasma electrons essentially behave as free electrons, simply quivering in the laser field. As

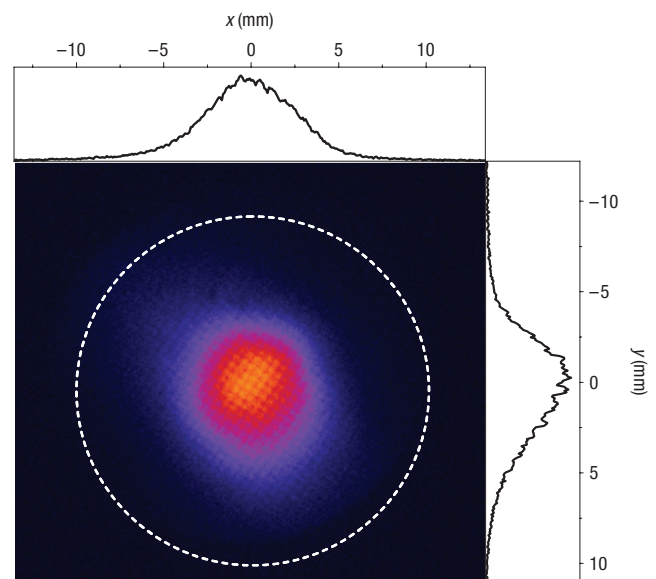


Figure 2 Spatial profile of the harmonic extreme-ultraviolet beam. This beam corresponds to the superposition of harmonics with orders $10 \leq p \leq 15$, 37 cm away from the target. The white dashed circle shows the spatial extension of the top-hat laser beam in the same plane. This extreme-ultraviolet beam has a divergence of 14 mrad (full-width at half-maximum).

the focused intensity is gradually increased up to the relativistic interaction regime, or when the laser field is *p*- rather than *s*-polarized, plasma electrons are driven across a steep electrostatic potential at the plasma–vacuum interface. This leads to a much richer and complex physics of the interaction, and to new effects, in particular the generation of high-order harmonics of the incident frequency in the spectrum of the reflected beam.

To illustrate this phenomenon, Fig. 2 shows the far-field spatial profile of the extreme-ultraviolet beam generated by a high-contrast *p*-polarized laser pulse focused at $5 \times 10^{17} \text{ W cm}^{-2}$ on an optically polished silica target (see the Methods section and Supplementary Information, Fig. S3). A collimated and smooth extreme-ultraviolet beam, which diverges about three times less than the fundamental beam, is clearly observed. This suggests a good phase-front quality, as well as a good transverse coherence of the harmonic source in the plane of the target surface, as opposed to what has been observed with picosecond laser pulses¹⁸.

This result, as well as the DPM system presented above, demonstrates that plasmas can be used on ultrashort timescales as active optical components, keeping excellent optical quality even at ultrahigh laser intensities, and thus can be exploited to produce new light sources with remarkable properties—for example, shorter wavelengths and sub-femtosecond durations. From a fundamental perspective, this also leads to better-defined interaction conditions, hence considerably simplifying the physics and the interpretation of high-intensity experiments, as we now show by considering the basic physics of HHG on PMs.

For the past 30 years, many models have been proposed to explain HHG from plasmas^{19–31}, but clear experimental validations have so far remained scarce. Recent results tend to support two generation mechanisms, coherent wake emission^{31,32} (CWE) and the relativistic oscillating mirror process^{7,33}, two processes which may in fact account for many former observations^{14,34–37}. We now present new and strong experimental evidence for these two mechanisms, and show that they lead to harmonics with very

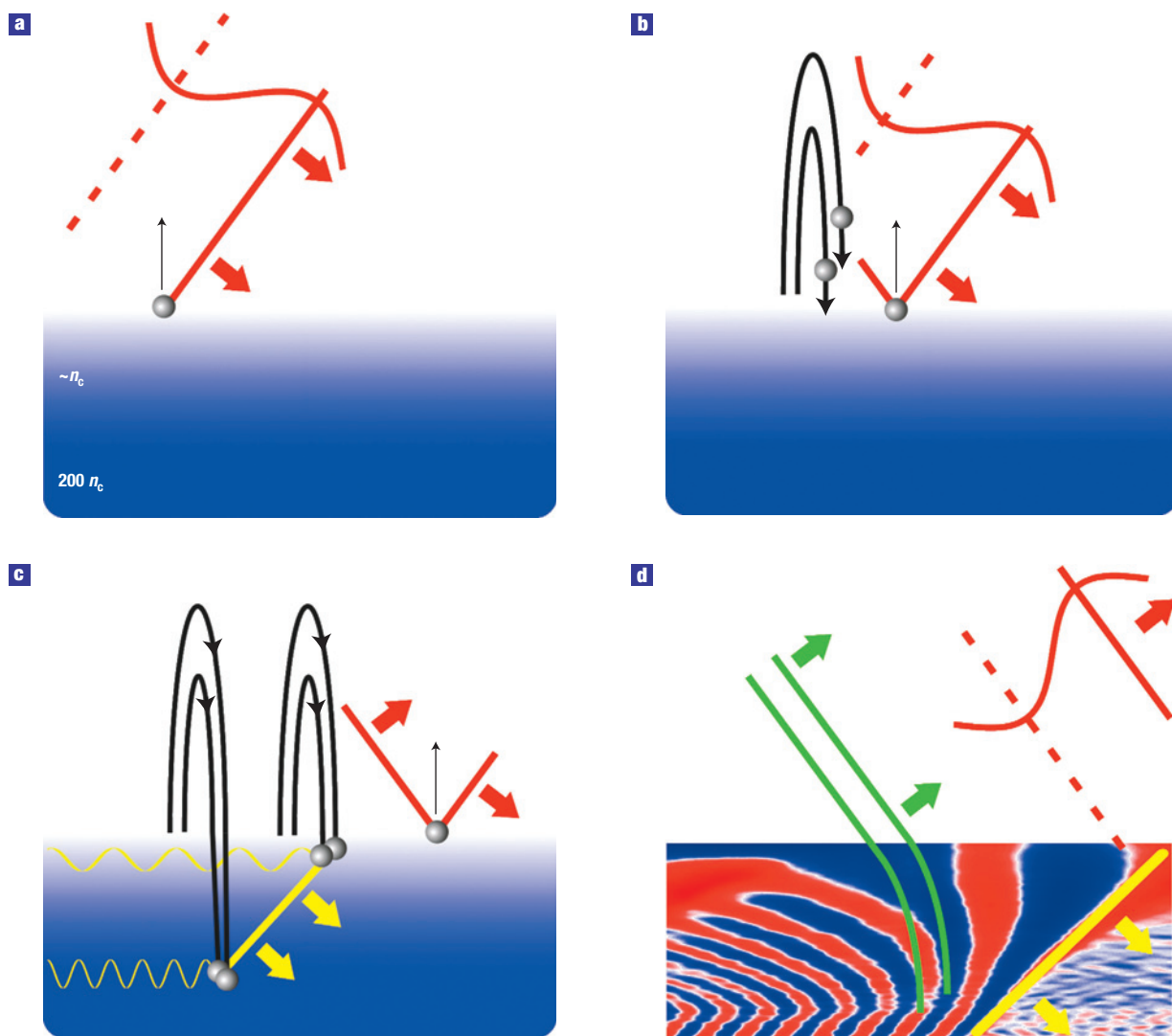


Figure 3 Schematic diagrams of different stages of the coherent wake emission process. **a**, Electrons around $n = n_c$ are pulled out of the plasma by the laser field. **b**, As the laser field decreases and changes sign, Brunel electrons are pushed back to the plasma. **c**, These electrons propagate in the overdense plasma, where they form an attosecond bunch. Owing to the oblique incidence of the laser beam, the superposition of the bunches formed at different times along the target surface results in an oblique density wavefront propagating into the plasma (thick yellow line). This density wave triggers plasma oscillations in its wake (yellow sinusoids). **d**, The wavefronts of these plasma oscillations, obtained from a PIC simulation. These plasma oscillations emit an attosecond light burst (wavefronts in green) as \mathbf{k} becomes parallel to the surface.

different properties, thus enabling us to distinguish unambiguously between them.

COHERENT WAKE EMISSION

In p -polarization, the laser electric field has a large component, E_{\perp} , along the target normal. When it points inwards, some electrons near the surface are pulled out of the plasma (Fig. 3a). As soon as E_{\perp} decreases, space-charge electrostatic fields drive some of these electrons back into the plasma (Fig. 3b,c), where they eventually no longer feel the laser field owing to plasma screening. These electrons thus propagate deeply into the plasma (Fig. 3c), and are responsible for a significant absorption of the laser pulse energy by steep density-gradient plasmas, an effect known as ‘vacuum heating’ or ‘Brunel absorption’^{38,39}. These Brunel electrons are also involved in harmonic generation through the recently proposed ‘coherent wake emission’ process³¹, efficient down to intensities of a few 10^{15} W cm⁻².

Simple analytical models^{38,39}, as well as particles-in-cells (PIC) simulations²⁵ (see Supplementary Information and Movie S1), reveal that Brunel electrons that move further into vacuum come back to the plasma with larger velocities, and thus eventually overtake the electrons that had smaller excursions (Fig. 3b,c). By this trajectory crossing, they form an attosecond bunch that penetrates the plasma, with a new bunch once every optical cycle. These bunches of charge push the plasma background electrons, driving up electronic plasma oscillations throughout a range of densities in the steep gradient, $n(x)$, at the surface of the plasma (Fig. 3c).

An ensemble of linear plasma oscillations with space-dependent frequencies, $\omega_p(x) = \omega_L \sqrt{n/n_c}$, is thus coherently triggered. Owing to this spatial dependence, the wavevector \mathbf{k} of this plasma wave has a time-varying direction (Fig. 3d). The wave, initially purely electrostatic and longitudinal ($\mathbf{E} \parallel \mathbf{k}$) when triggered by Brunel electrons, thus progressively acquires a partial transverse

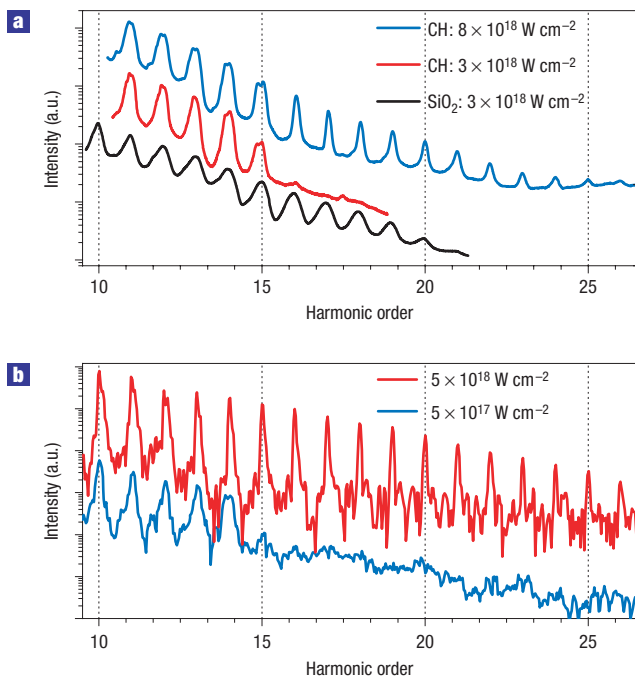


Figure 4 Harmonic spectra from plasma mirrors. **a**, Experimental spectra obtained by focusing high-intensity high-contrast 60 fs pulses on plastic and silica targets, for two laser intensities. The relative positions of the curves are arbitrary. **b**, Harmonic spectra from PIC simulations, for two different laser intensities, and a fixed plasma density $n_{\text{max}} = 220 \times n_c$.

character, and can therefore radiate light⁴⁰. Because this light emission is triggered once every optical cycle by returning Brunel electrons, the emitted spectrum consists of harmonics of the incident frequency. These harmonics extend as far as the maximum plasma frequency, ω_p^{max} , of the target, and hence up to the order $p_{\text{CWE}} = \sqrt{n_{\text{max}}/n_c}$, where n_{max} is the maximum plasma density. With typical values of n_{max} of a few hundred times n_c , this spectrum thus reaches into the extreme-ultraviolet regime.

This essential prediction of the CWE model is directly confirmed by Fig. 4a. The two lower curves show experimental harmonic spectra generated on silica and plastic targets at an intensity of about $3 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$. In both cases, the maximum harmonic frequency corresponds to the expected maximum plasma frequency, ω_p^{max} , for fully ionized solid-density targets. A similar agreement has been obtained from aluminium and gold targets (see Supplementary Information, Fig. S4). This is crucial evidence for the CWE mechanism, which strongly reinforces the results presented in ref. 31.

For this mode conversion to be efficient, phase-matching between the plasma oscillations and the outgoing electromagnetic modes at the plasma vacuum interface is required. Such phase-matching can be shown to be fulfilled when \mathbf{k} is parallel to the surface^{31,41,42}. Because \mathbf{k} is gradually rotating, this only occurs transiently, in a few-hundred-attosecond window following excitation by each electron burst (Fig. 3d): extreme-ultraviolet light is hence emitted in the form of a train of attosecond pulses. In analogy with the reflection of light pulses on ‘chirped mirrors’ used in conventional optics⁴³, each frequency, ω , originates from a different depth in the density gradient, where $\omega_p(x) = \omega$, and these attosecond pulses have a positive chirp progressively drifting to higher frequencies.

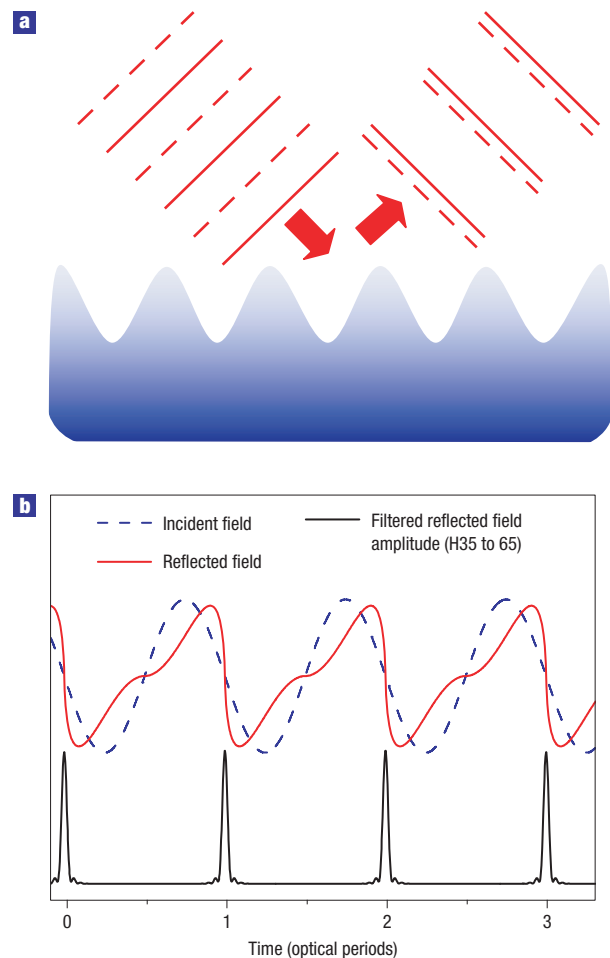


Figure 5 Relativistic oscillating mirror mechanism. **a**, Schematic diagram of the process. The solid and dashed lines show wavefronts of the incident and departing laser beam, corresponding respectively to minima and maxima of the electric field. **b**, Total electric field reflected by a ROM (red curve), and intensity envelope of the spectrally filtered radiation (from harmonics 35 to 65, black curve).

Harmonics produced by CWE now provide a direct way to investigate the dynamics of plasma mirrors driven at high intensity, and especially of Brunel electrons. Besides, PIC simulations predict that CWE has a typical conversion efficiency of 10^{-4} (ref. 31). Sources of extreme-ultraviolet and attosecond pulses in the 25–80 nm range with low divergence (down to a few milliradians), and energies in the 100 μJ range, could thus now be obtained by loosely focusing multi-TW laser pulses beyond a few $10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ on solid targets.

RELATIVISTIC OSCILLATING MIRROR

When the laser intensity is increased further, beyond a few $10^{18} \text{ W cm}^{-2}$ at visible wavelengths, the laser-driven motion of the plasma surface becomes relativistic, leading to strong Doppler shifts of the laser light. As this oscillating surface chases the retreating optical phase fronts, it compresses the reflected electromagnetic field, distorting it from its original sinusoid (Fig. 5a,b). As this phase distortion repeats itself with the periodicity of the driving laser field, harmonics of the incident frequency then appear in the reflected beam. As shown in Fig. 5b, this harmonic comb is again associated with a train of attosecond pulses, each pulse

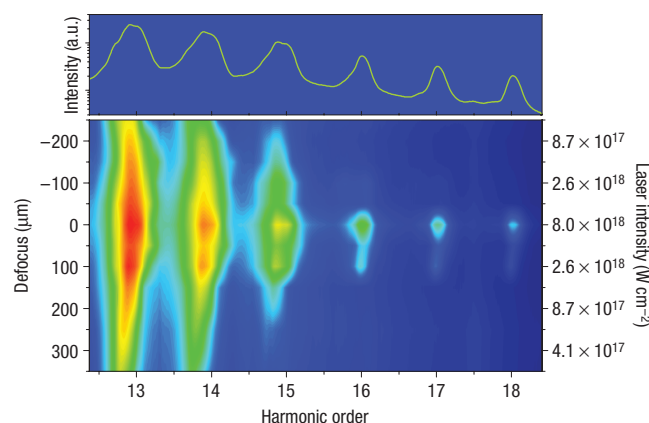


Figure 6 Harmonic spectrum dependency on the laser intensity. Harmonic spectra obtained on plastic plotted on logarithmic scale as a function of distance between the target surface and the laser best focus. The right axis shows the estimated peak intensity corresponding to each position. The intensity at the best focus is about $8 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$, and the upper panel shows the spectrum obtained at this intensity. Each spectrum is averaged on 5 laser shots, and measurements were carried out for 10 focusing positions.

corresponding to an outward excursion of the plasma surface. This is the so-called ‘relativistic oscillating mirror’ (ROM) process, which was identified theoretically more than a decade ago^{24,26}. As opposed to CWE, the maximum harmonic order that can be obtained by this process now strongly depends on the laser intensity^{9,30} and can thus exceed the plasma frequency.

To get experimental evidence of this process, the high-contrast pulses obtained from the DPM were focused at the highest intensities currently achievable in our laboratory, using a parabolic mirror with an $f/4$ numerical aperture. The top-most curve in Fig. 4a shows the harmonic spectrum obtained from the same plastic target as before, now delivering intensities approaching $10^{19} \text{ W cm}^{-2}$, that is, well beyond the relativistic threshold. CWE harmonics are still observed up to the maximum plasma frequency $\omega_p^{\text{max}} = 15\omega_L$ of the target, but some harmonics now appear above ω_p^{max} . We attribute these harmonics to the ROM mechanism, and now present clear experimental observations that unambiguously support this interpretation.

SPECTRAL PROPERTIES OF CWE AND ROM HARMONICS

On the upper HHG spectrum of Fig. 4a, one striking feature is that ROM harmonics, that is, those with $p > 15$, are about half the spectral width of those generated by CWE on any material (see Supplementary Information, Fig. S5). This difference in spectral width is also observed in simulations. Figure 4b shows harmonic spectra obtained from PIC simulations, for two laser intensities, $5 \times 10^{17} \text{ W cm}^{-2}$ and $5 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$, and a maximum plasma density, $n_{\text{max}} = 220 \times n_c$. At the lower intensity, broad CWE harmonics are observed up to order $p_{\text{CWE}} = \sqrt{n_{\text{max}}/n_c}$, as in the experiment. At the higher intensity, narrow harmonics appear for orders above p_{CWE} , which PIC simulations allow us to clearly attribute to the ROM process.

If the individual harmonics were all Fourier-transform limited, CWE harmonics would have to be generated during a shorter time period than ROM harmonics, to account for these differences in spectral width. This is inconsistent with the much stronger intensity dependence of this second mechanism, as we will see below. PIC simulations show that these differences in spectral width are rather due to the very different chirps of the individual

harmonics generated by these two mechanisms. Considering CWE, in the non-relativistic regime, the peak velocity of Brunel electrons varies in time, according to the intensity envelope of the laser pulse. As a result, the delay between the formation of an electron bunch by returning Brunel electrons at $n \approx n_c$, and the generation of the associated attosecond pulse at $n \gg n_c$, is time dependent, and the period between successive attosecond pulses in the train generated by this process shifts gradually. CWE harmonics are hence not Fourier-transform limited, but negatively chirped^{31,44}, and this accounts for their large spectral width. In contrast, the chirp of the harmonics from ROM is much smaller, owing to the much better periodicity of the associated attosecond pulse train, imposed by the regular oscillations of the plasma surface, in turn tied in phase to the driving laser.

INTENSITY DEPENDENCES OF CWE AND ROM

The CWE and ROM mechanisms are also characterized by very different dependences on laser intensity. This is illustrated in Fig. 6, which shows the intensity dependence of the harmonic spectrum from a plastic target, measured by varying the distance between the target surface and the best focus of the laser beam (Fig. 6). CWE is a quasi-linear conversion process, the overall efficiency of which depends only weakly on laser intensity³¹. Thus, harmonics below order 15 vary very weakly with changing laser intensity, and are still clearly present below the relativistic threshold. On the contrary, harmonics beyond order 15 vanish sharply and almost simultaneously as soon as the target is moved away from the best focus by a distance of the order of the Rayleigh length—an intensity change of about 50%. They are only observed for intensities approaching $10^{19} \text{ W cm}^{-2}$. This is highly characteristic of the ROM mechanism, a relativistic process that is here driven near its intensity threshold, and is therefore highly nonlinear.

OUTLOOK

Despite more than 20 years of investigations on HHG from plasmas, so far clear signatures of the underlying mechanisms could generally not be teased out from the often uncontrollable—and sometimes unknowable—conditions of the plasma produced. This is now possible using ultrashort high-temporal-contrast ultraintense laser pulses. In addition, this interaction regime is of high interest for the development of extreme-ultraviolet sources from plasmas, as harmonics are then emitted as a collimated light beam. This is a first step towards a source of intense attosecond pulses, that is needed for the development of the new attosecond science¹¹. In this respect, the ROM mechanism is particularly appealing, as it could be used to generate intense and extremely short attosecond pulses with photon energies up to the kiloelectron volt range⁷.

In a more general context, many schemes have now been proposed, or even validated in experiments, to put plasmas to work as high-intensity optical elements, such as in the case of the plasma-based optical switches presented in this paper. Such ‘plasma optics’ are for instance predicted to further amplify ultraintense lasers⁴⁵, to tailor⁴⁶ or to temporally compress ultrashort pulses down to the few femtosecond range^{47,48}, and to generate ultrashort coherent radiation from the terahertz^{41,42} to X-ray range. The present work shows that this interplay between plasmas as objects of fundamental study, and plasmas as high-intensity optical elements, is a very promising route to explore new frontiers of high-intensity laser-matter interaction.

METHODS

DOUBLE-PLASMA-MIRROR SET-UP

The DPM set-up is located in a vacuum chamber (see Supplementary Information, Fig. S1), inserted between the experimental chamber and the

compressor of a 10 TW, 60 fs, 10 Hz chirped-pulse-amplification Ti–Sa laser. The 700 mJ laser pulses are focused by an off-axis parabolic mirror of 1.25 m focal length, midway between two antireflection-coated plates, located a few centimetres apart (see Supplementary Information, Fig. S1). The laser beam is horizontally polarized, and is thus in *s*-polarization with respect to the plane of incidence on these two plates, which is vertical. This maximizes the reflectivity of these plasma mirrors once they are triggered^{4,5}. The laser beam size on the plates is about 1 mm, leading to fluences of 90 and 70 J cm^{−2} on the first and second PM, respectively. The divergent beam reflected by these two PMs is collimated by a second off-axis parabola, and is then directed to the experimental chamber, where it can be used for high-contrast, high-intensity experiments. Owing to the ablation of the antireflection coating induced by the main laser pulse, the dielectric plates are translated by a few millimetres after each shot. However, this device can operate continuously at a repetition rate of up to 1 Hz for about 2,000 shots, before the antireflection plates have to be changed. This DPM can easily be bypassed owing to two retractable mirrors (see Supplementary Information, Fig. S1), thus making it possible to investigate the influence of the temporal contrast in high-intensity experiments. Supplementary Information, Fig. S2 shows the focal spot of the 10 TW laser beam (measured at full power), with and without the DPM. These two images clearly demonstrate that the spatial quality of the beam is not degraded by the DPM.

MEASUREMENTS OF THE EXTREME-ULTRAVIOLET BEAM FAR-FIELD SPATIAL PROFILE

High-order harmonics are first generated by reflection on a solid target at high intensity (see Supplementary Information, Fig. S3). The resulting beam then reflects at grazing incidence ($\theta_i = 80^\circ$) on two dielectric plates with a broadband antireflection coating around $\lambda = 800$ nm, the fundamental wavelength of the initial laser pulse. At this wavelength, the total reflectivity of the two plates is less than 10^{-4} , whereas it is about 50% for harmonics 10–20, owing to the grazing incidence⁴⁹. The remaining fundamental frequency and low-order harmonics ($p \leq 9$) are then eliminated using a 200-nm-thick tin filter. This filter transmits light only for frequencies between the 10th and 15th harmonics of the laser beam, with a maximum transmission of about 20% around order 14. The spatial profile of the resulting extreme-ultraviolet beam is measured using microchannel plates, coupled to a phosphor screen that is imaged on a CCD (charge-coupled device) camera. This microchannel plate detector is sensitive only to wavelengths smaller than 110 nm (≈ 7 th harmonic), which definitely excludes any contribution of the fundamental or low-order harmonics to the measured signal.

PIC SIMULATIONS

The results presented in Fig. 4b have been obtained using the $1\frac{1}{2}$ -D relativistic PIC code EUTERPE⁵⁰, which allows for oblique incidence of the laser beam by a transformation to a moving frame. Both electrons and ions are mobile, and all results are converted back into the laboratory frame at the end of the simulations. Because these simulations neglect several spatial effects (laser intensity distribution in the focal spot, diffraction of the harmonic beam from the target to the spectrometer), they cannot be expected to exactly reproduce measured spectra such as the upper curve of Fig. 4a. This can explain why, in the simulation corresponding to the highest intensity (Fig. 4b), harmonics below p_{CWE} are narrower than what is observed experimentally.

Received 20 November 2006; accepted 16 March 2007; published 15 April 2007.

References

- Rolland, C. & Corkum, P. B. Generation of 130-fsec midinfrared pulses. *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 1625–1629 (1986).
- Teubner, U., Wagner, U. & Forster, E. Sub-10 fs gating of optical pulses. *J. Phys. B* **34**, 2993–3002 (2001).
- Kapteyn, H. C., Murnane, M. M., Szoke, A. & Falcone, R. W. Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering. *Opt. Lett.* **16**, 490–492 (1991).
- Doumy, G. *et al.* Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses. *Phys. Rev. E* **69**, 026402 (2004).
- Dromey, B., Kar, S., Zepf, M. & Foster, P. The plasma mirror—A subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Rev. Sci. Instrum.* **75**, 645–649 (2004).
- Mourou, G. A., Tajima, T. & Bulanov, S. V. Optics in the relativistic regime. *Rev. Mod. Phys.* **78**, 309–371 (2006).
- Dromey, B. *et al.* High harmonic generation in the relativistic limit. *Nature Phys.* **2**, 456–459 (2006).
- Plaja, L., Roso, L., Rzazewski, K. & Lewenstein, M. Generation of attosecond pulse trains during the reflection of a very intense laser on a solid surface. *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 1904–1911 (1998).
- Gordienko, S., Pukhov, A., Shorokhov, O. & Baeva, T. Relativistic doppler effect: Universal spectra and zeptosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 115002 (2004).
- Naumova, N. M., Nees, J. A., Sokolov, I. V., Hou, B. & Mourou, G. A. Relativistic generation of isolated attosecond pulses in a λ^3 focal volume. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 063902 (2004).
- Tsakiris, G., Eidmann, K., Meyer-ter-Vehn, J. & Krausz, F. Route to intense single attosecond pulses. *New J. Phys.* **8**, 19 (2006).
- Baeva, T., Gordienko, S. & Pukhov, A. Relativistic plasma control for single attosecond x-ray burst generation. *Phys. Rev. E* **74**, 065401 (2006).
- Agostini, P. & DiMauro, L. The physics of attosecond light pulses. *Rep. Prog. Phys.* **67**, 813 (2004).
- Monot, P. *et al.* High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma. *Opt. Lett.* **29**, 893–895 (2004).
- Watts, I. *et al.* Measurements of relativistic self-phase-modulation in plasma. *Phys. Rev. E* **66**, 036409 (2002).
- Luan, S., Hutchinson, M., Smith, R. & Zhou, F. High dynamic-range 3rd-order correlation-measurement of picosecond laser-pulse shapes. *Meas. Sci. Technol.* **4**, 1426–1429 (1993).
- Chvykov, V., Rousseau, P., Reed, S., Kalinchenko, G. & Yanovsky, V. Generation of 10^{11} contrast 50 TW laser pulses. *Opt. Lett.* **31**, 1456–1458 (2006).
- Zhang, J. *et al.* Coherence and bandwidth measurements of harmonics generated from solid surfaces irradiated by intense picosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **54**, 1597–1603 (1996).
- Carman, R. L., Forslund, D. W. & Kindel, J. M. Visible harmonic emission as a way of measuring profile steepening. *Phys. Rev. Lett.* **46**, 29–32 (1981).
- Carman, R. L., Rhodes, C. K. & Benjamin, R. F. Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in CO₂-laser-produced plasmas. *Phys. Rev. A* **24**, 2649–2663 (1981).
- Bezzirides, B., Jones, R. D. & Forslund, D. W. Plasma mechanism for ultraviolet harmonic radiation due to intense CO₂ light. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 202–205 (1982).
- Grebogi, C., Tripathi, V. K. & Chen, H. Harmonic generation of radiation in a steep density profile. *Phys. Fluids* **26**, 1904–1908 (1983).
- Wilks, S. C., Kruer, W. L. & Mori, W. B. Odd harmonic-generation of ultra-intense laser-pulses reflected from an overdense plasma. *IEEE Trans. Plasma Sci.* **21**, 120–124 (1993).
- Bulanov, S. V., Naumova, N. M. & Pegoraro, F. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser-pulse with an overdense plasma. *Phys. Plasmas* **1**, 745–757 (1994).
- Gibbon, P. Harmonic generation by femtosecond laser-solid interaction: A coherent water-window light source? *Phys. Rev. Lett.* **76**, 50–53 (1996).
- Lichters, R., Meyer-ter-Vehn, J. & Pukhov, A. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Phys. Plasmas* **3**, 3425–3437 (1996).
- von der Linde, D. & Rzazewski, K. High-order optical harmonic generation from solid surfaces. *Appl. Phys. B* **63**, 499–506 (1996).
- Ondarza-Rovira, R. & Boyd, T. J. M. Plasma harmonic emission from laser interactions with dense plasma. *Phys. Plasmas* **7**, 1520–1530 (2000).
- Pirozhkov, A. S. *et al.* Attosecond pulse generation in the relativistic regime of the laser-foil interaction: The sliding mirror model. *Phys. Plasmas* **13**, 013107 (2006).
- Baeva, T., Gordienko, S. & Pukhov, A. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma. *Phys. Rev. E* **74**, 046404 (2006).
- Quéré, F. *et al.* Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 125004 (2006).
- Teubner, U. *et al.* Harmonic emission from the rear side of thin overdense foils irradiated with intense ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 185001 (2004).
- Watts, I. *et al.* Dynamics of the critical surface in high-intensity laser-solid interactions: Modulation of the XUV harmonic spectra. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 155001 (2002).
- von der Linde, D. *et al.* Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **52**, R25 (1995).
- Norreys, P. A. *et al.* Efficient extreme UV harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1832–1835 (1996).
- Tarasevitch, A. *et al.* Generation of high-order spatially coherent harmonics from solid targets by femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **62**, 023816 (2000).
- Teubner, U. *et al.* Anomalies in high-order harmonic generation at relativistic intensities. *Phys. Rev. A* **67**, 013816 (2003).
- Brunel, F. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52–55 (1987).
- Bonnaud, G., Gibbon, P., Kindel, J. & Williams, E. Laser interaction with a sharp-edged overdense plasma. *Laser Part. Beams* **9**, 339–354 (1991).
- Jackson, J. *Classical Electrodynamics* (Wiley, New York, 1998).
- Sheng, Z. M., Mima, K., Zhang, J. & Sanuki, H. Emission of electromagnetic pulses from laser wakefields through linear mode conversion. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 095003 (2005).
- Sheng, Z. M., Mima, K. & Zhang, J. Powerful terahertz emission from laser wake fields excited in inhomogeneous plasmas. *Phys. Plasmas* **12**, 123103 (2005).
- Szipoos, R., Ferencz, K., Spielmann, C. & Krausz, F. Chirped multilayer coatings for broad-band dispersion control in femtosecond lasers. *Opt. Lett.* **19**, 201–203 (1994).
- Varju, K. *et al.* Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses. *J. Mod. Opt.* **52**, 379–394 (2005).
- Fisch, N. J. & Malkin, V. M. Generation of ultrahigh intensity laser pulses. *Phys. Plasmas* **10**, 2056–2063 (2003).
- Wu, H. C., Sheng, Z. M., Zhang, Q. J., Cang, Y. & Zhang, J. Manipulating ultrashort intense laser pulses by plasma Bragg gratings. *Phys. Plasmas* **12**, 113103 (2005).
- Faure, J. *et al.* Observation of laser-pulse shortening in nonlinear plasma waves. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 205003 (2005).
- Stibenz, G., Zhavoronkov, N. & Steinmeyer, G. Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament. *Opt. Lett.* **31**, 274–276 (2006).
- Takahashi, E. J., Hasegawa, H., Nabekawa, Y. & Midorikawa, K. High-throughput, high-damage-threshold broadband beam splitter for high-order harmonics in the extreme-ultraviolet region. *Opt. Lett.* **29**, 507–509 (2004).
- Bonnaud, G. & Reisse, G. Particle code study of the influence of non-monochromaticity of laser-light on stimulated Raman-scattering in laser-irradiated plasmas. *Nucl. Fusion* **26**, 633–646 (1986).

Acknowledgements

Financial support from the Conseil Général de l'Essonne (ASTRE program) is acknowledged. Correspondence and requests for materials should be addressed to F.Q. Supplementary Information accompanies this paper on www.nature.com/naturephysics.

Competing financial interests

The authors declare no competing financial interests.

Reprints and permission information is available online at <http://npg.nature.com/reprintsandpermissions/>

Phase Properties of Laser High-Order Harmonics Generated on Plasma Mirrors

F. Quéré,¹ C. Thauray,¹ J.-P. Geindre,² G. Bonnaud,¹ P. Monot,¹ and Ph. Martin¹

¹*Service des Photons, Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, DSM/IRAMIS, CEN Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France*

²*Laboratoire pour l'utilisation des lasers intenses, UMR 7605-CNRS-CEA-Ecole Polytechnique-Université Paris VI, F91128 Palaiseau France*

(Received 13 September 2007; published 6 March 2008)

As a high-intensity laser-pulse reflects on a plasma mirror, high-order harmonics of the incident frequency can be generated in the reflected beam. We present a numerical study of the phase properties of these individual harmonics, and demonstrate experimentally that they can be coherently controlled through the phase of the driving laser field. The harmonic intrinsic phase, resulting from the generation process, is directly related to the coherent sub-laser-cycle dynamics of plasma electrons, and thus constitutes a new experimental probe of these dynamics.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.100.095004](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.095004)

PACS numbers: 52.38.-r, 42.65.Ky, 52.59.Ye, 52.65.Rr

The generation of high-order harmonics of intense femtosecond (fs) laser pulses is one of the promising paths for the production of energetic, short-wavelength, ultrashort light pulses [1,2]. The practical characteristics of such an extreme ultraviolet (XUV) light source, e.g., divergence, duration, coherence- are largely determined by the phase properties of the harmonics, which should therefore be carefully studied in order to understand and optimize these sources. From a fundamental point of view, laser harmonics generated by driving a system with a strong laser field constitute a powerful diagnostic to investigate the dynamics of this system, and in this respect too, phase properties are of prime importance.

For these reasons, phase properties of high-order harmonics generated from atoms or molecules have been extensively studied over the past 15 years [1]. In this case, the relative phases of the harmonics are directly related to the sub-laser-cycle dynamics of the continuum electron wave-packet responsible for the generation [3]. These phases are well defined and relatively weak: harmonics are thus synchronized over a broad frequency range, and their superposition produces trains of attosecond pulses. Because these dynamics depend on laser intensity, the temporal and spatial intensity envelopes of the driving laser-pulse lead to variations of the attosecond pulses properties both in time and space [4]. These variations result in nontrivial temporal and spatial intrinsic phases of *individual* harmonics, which in turn affect the properties of the harmonic beam.

Reflection of a laser beam on a plasma-mirror (PM) at high intensities ($I\lambda^2 \gtrsim 10^{16} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$, where λ is the laser wavelength and I the laser intensity) provides another means for high-order harmonic generation (HHG), and is predicted to lead to attosecond XUV pulses with shorter wavelengths and higher energies than those presently generated in gases [2,5]. This Letter presents the first experimental and theoretical study of the intrinsic spatial and temporal-phase properties of *individual* harmonics gener-

ated from plasma mirrors, for the two HHG mechanisms identified so far [2,6,7], coherent wake emission (CWE) [8,9] and the relativistic oscillating mirror process (ROM) [10,11].

Although they correspond to very different physical processes, CWE and ROM have a common root, the Brunel mechanism [12,13], where electrons at the plasma surface are first accelerated in vacuum by the laser field, and then pushed back toward the plasma. ROM occurs as these electrons are pulled out of the plasma. For laser intensities such that $I\lambda^2 \gtrsim 1.37 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^2$, these electrons reach relativistic velocities that lead to a Doppler upshift of the reflected light wave, resulting in the production of attosecond pulses predicted to be almost Fourier-transform limited [5,14]. When Brunel electrons return to the plasma, some of them can bunch temporally. As they travel across the density gradient at the plasma surface, these electrons trigger CWE, by exciting in their wake high-frequency plasma oscillations which subsequently emit light through linear mode conversion, in the form of slightly chirped attosecond pulses [9]. CWE and ROM have recently been discriminated experimentally [6,7], through different intensity dependences, spectral ranges and spectral widths of the associated harmonics [6]. The present study extends this work by revealing extremely different phase properties of the individual harmonics associated to these two processes.

We start with a numerical study of the phase properties, and concentrate on the temporal phases $\phi_n(t)$ of the individual harmonics - n being the harmonic order. Nontrivial phases of the individual harmonics are associated to deviations from perfect periodicity in the train of attosecond pulses [4]. Such deviations can result from the intensity envelope $I(t)$ of the laser pulse. For instance, this time-dependent intensity can lead to variations of the carrier-envelope relative phase (CEP) of attosecond pulses in the train, or to a variable time-spacing between these pulses. The contribution of the first effect to $\phi_n(t)$ is independent

of harmonic order, while the contribution of the second is proportional to n . A temporal dependence of the target response can also affect the periodicity of the train, and lead to additional contributions to the phases of the harmonics. In the case of PM's, the density gradient at the plasma-vacuum interface evolves during the laser pulse because of ion motion, and this gradient influences both CWE and ROM [7].

To quantify these different effects, we performed 2D particle-in-cell (PIC) simulations using the relativistic kinetic code CALDER [15]. The reflected electromagnetic field in vacuum is frequency filtered around a group of harmonics, to obtain the train of attosecond pulses generated upon reflection on the plasma. Figures 1(a)–1(c) show, for different cases, the temporal positions of the attosecond pulses maxima within each optical cycle, $t_e(k) = t_p - k$, where t_p is absolute time of a maximum (in units of the laser optical period T_L) and k the number of the corresponding laser optical cycle. The time origin is chosen such that zeros of the laser field occur at $t_e = 0$. Hollow dots correspond to cases where the normalized vector potential $a_0 = eE_0/\omega_0 m_e c$ at the peak of the pulse is 0.2, and CWE dominates over the entire pulse. Full triangles correspond to $a_0 = 2$, and we have selected a spectral range where harmonics are only due to ROM (i.e., harmonics beyond the maximum plasma frequency [6]).

To separate the effect of the laser intensity envelope from that of the time-varying plasma conditions, we first performed simulations with fixed ions [Fig. 1(a)]. In the

case of CWE, t_e then varies by about $0.7T_L$ over the entire laser pulse. The time spacing between successive attosecond pulses, $t_e(k+1) - t_e(k)$, increases during the laser pulse, leading to a negative chirp (i.e., from blue to red) of the individual harmonics. In addition, we observe that neither the CEP phase nor the chirp of the attosecond pulses vary significantly along the train. The variable time spacing is thus the dominant contribution to the chirp, leading to a linear variation of the chirp parameter $\partial^2 \phi_n / \partial t^2$ as a function of the harmonic order n [Fig. 1(b)] [4]. In the case of ROM, less attosecond pulses are emitted, because of a stronger dependence of its efficiency on intensity compared to CWE [6]. In addition, t_e hardly varies along the laser pulse: in strong contrast with CWE, this mechanism leads to an almost perfect periodic time of emission [16]. Since the CEP of the attosecond pulses is also observed to be constant along the train, individual ROM harmonics have a negligible temporal chirp.

To study the additional effect of the temporal evolution of the plasma conditions, we have performed simulations with mobile ions, with initial ion and electron temperatures of, respectively, 0.1 and 0.5 keV [Fig. 1(c)]. The emission time t_e is now observed to vary in the case of ROM, but this variation is small—less than $T_L/10$ over the entire laser pulse. More striking effects occur for CWE. CWE attosecond pulses now start to be emitted later in the 35-cycle long (≈ 90 fs at 800 nm) laser pulse, leading to the suppression of the first part of the emission time curve $t_e(k)$. This is because CWE requires a short, but nonvanishing density gradient, to allow for light emission by plasma oscillations [9,17]. This density gradient develops during the laser pulse because of plasma expansion, and reaches a scale length of about $\lambda/70$ at the end of the laser pulse. In the second half of the pulse, t_e follows a curve similar to what is obtained with fixed ions. In addition to this effect, a drift of the attosecond pulses CEP now occurs between the beginning and the end of the train, with a total amplitude of $\approx \pi$ in the present case [Fig. 1(d)].

If the same simulation of CWE—i.e. with moving ions—is now performed with a constant laser intensity, t_e is observed to be almost constant, but the same drift of the CEP still occurs. This leads to two conclusions. (i) Variations of the CEP are induced by the temporal dependence of the gradient scale length L . This is consistent with the CWE model, where the field of the emitted attosecond pulses depends on the temporal evolution of the plasma oscillations in the density gradient, which is in turn largely determined by the spatial profile of this gradient [9]. (ii) Variations of t_e are mostly due to the temporal evolution of the laser intensity, as in the case of fixed ions, but now with an additional temporal drift due to the influence of the gradient length on this emission time. Comparing these different simulations, we find that, in the experimentally relevant case of moving ions and time-dependent laser intensity, the variation of the emission time is the dominant contribution to the intrinsic phase of CWE har-

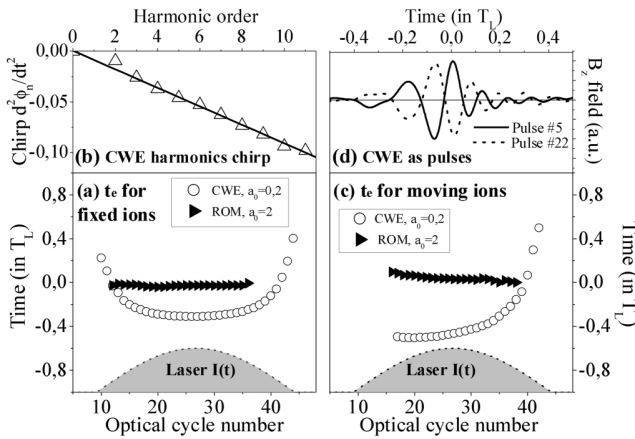


FIG. 1. Emission times of CWE and ROM attosecond pulses (superposition of harmonics 4 to 10 for CWE, and 11 to 35 for ROM), for a plasma of maximum density $110n_c$ (n_c critical density at the laser frequency), driven by a 35-cycle $\cos^2(t)$ laser pulse at 45° incidence. In (a), ions are kept fixed, and the exponential density gradient scale length is $\lambda/100$ ($\lambda/30$) for CWE (ROM). (b) The chirp parameter of individual CWE harmonics obtained from PIC simulations in this case. In (c) ions are allowed to move, and the initial density gradient is infinitely steep. (d) The fields of two individual CWE attosecond pulses in the train in this case.

monics, exceeding that of the CEP variations by a factor of more than 10.

We now turn to experiment to test some of these predictions. We first consider the temporal-phase properties. A nonvanishing and nontrivial (i.e., not linear) temporal phase $\phi_n(t)$ of harmonic n leads, in the spectral domain, to a broadening of the harmonic peak, compared to the case of an harmonic pulse of same duration with no temporal phase. If a phase $\phi_L(t)$ is also applied to the driving laser pulse, it combines with the intrinsic phase ϕ_n^i induced during the HHG process, and leads to a total phase $\phi_n(t) = \phi_n^i(t) + n\phi_L(t)$. The magnitude of $\phi_n(t)$, and hence the spectral width of the harmonics, can thus be modified — either enhanced, or reduced if $\phi_n^i(t) \neq 0$ — by using an adequate temporal phase of the laser pulse [18].

Figure 2(a) shows the result of such a measurement for CWE harmonics generated on a silica target, using the UHI10 laser system at Saclay Laser Interaction Center (SLIC), a 10-TW 60-fs 790-nm titanium:sapphire laser system, with a temporal contrast of 10^{-10} obtained with a double plasma-mirror optical switch [6,19]. The temporal phase of the driving laser pulse was changed by applying a chirp, simply moving one of the gratings in the compressor. The spectral width $\Delta\omega$ of harmonic 13 was measured using an imaging flat-field spectrometer, consisting in a toroidal mirror followed by a flat varied line spacing grating, with a resolution better than $10^{-2}\omega_0$ (ω_0 being the laser frequency) in this spectral range. It is plotted as a function of the dimensionless chirp parameter ξ of the laser pulse, related to the pulse duration τ by $\tau = \tau_{\text{FTL}}\sqrt{1 + \xi^2}$, where τ_{FTL} is the Fourier-transform-limited (FTL) pulse duration.

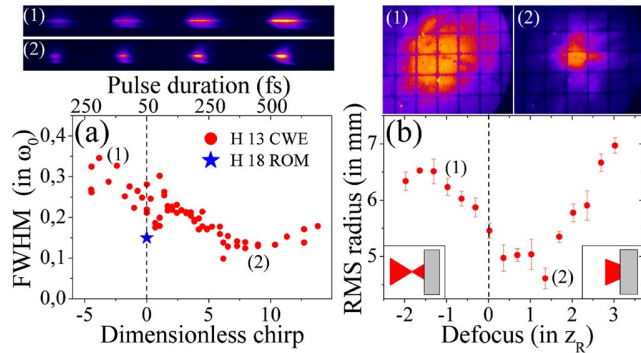


FIG. 2 (color online). (a) Measured spectral width of harmonic 13 generated by CWE ($a_0 = 0.25$ for FTL pulses), as a function of the dimensionless chirp parameter ξ of the laser pulse. The images show HHG spectra obtained around harmonic 13 for the two different chirps indicated on the graph. The spectral width of harmonic 18 generated by ROM ($a_0 = 2$) with a FTL laser pulse is shown for comparison. (b) Diameter of the CWE harmonic beam in the far field, generated on a plastic target (orders ≈ 13 to 15 filtered using a 100 nm thick Al filter), as a function of the distance between target surface and best focus ($a_0 = 0.6$ at best focus). The two upper images show the beam patterns for two different positions.

As predicted by our theoretical study, $\Delta\omega$ reaches a minimum when the laser pulse is positively chirped ($\xi > 0$), i.e., when its phase compensates, at least partially, for the negative intrinsic phase of the CWE harmonic.

The spectral width of the 18th ROM harmonic [6] generated on a plastic target by a FTL 60 fs pulse from UHI10 is also shown on this graph. It is comparable to the smallest spectral width obtained for CWE harmonics with a positively chirped laser pulse, although ROM harmonics are emitted during a shorter fraction of the laser pulse (Fig. 1). Following our numerical study, this observation is explained by the fact that the intrinsic phase of ROM harmonics is smaller than that of CWE.

These temporal effects have an exact analogue in the spatial domain. In CWE, the spatial dependence of the laser intensity at the focus results in a time of emission of the attosecond pulses that varies spatially, and thus in an intrinsic spatial phase $\psi_n(r)$ of the harmonics. This phase increases the divergence of the harmonic beam. In analogy to the experiment of Fig. 2(a), it can be partially compensated by a spatial phase $\psi_L(r)$ of the laser beam of opposite sign, thus leading to a reduced divergence of the harmonic beam. $\psi_L(r)$ can be controlled by moving the target surface away from the best focus of the beam, to a point where the beam wave front has a nonvanishing curvature.

Figure 2(b) shows the root-mean square radius of a CWE harmonic beam 37 cm away from the target, as a function of the distance between the target surface and the laser best focus. The minimum divergence of the harmonic beam is obtained when the best focus of the laser beam is placed beyond the target surface: in this situation, the phase advance of the laser field at the edges of the beam compensates for the delayed emission time of the attosecond pulses due to the lower laser intensity (Fig. 1). All these result strongly support the numerical findings presented above, and demonstrate the coherent control of XUV beams emitted by overdense plasmas.

We now analyze the physics of HHG from PM's to interpret these results. Because it is based on a Doppler effect, ROM is expected to generate short-wavelength light most efficiently when outgoing Brunel electrons reach their maximum velocity along the direction of the reflected beam. In contrast, CWE is triggered when Brunel electrons travel across the overdense part of the plasma. These different stages of the Brunel mechanism correspond to well-defined areas of the $x - p_x$ phase-space density (where x is the spatial coordinate along the target normal) of the plasma electrons at specific times [see white dashed boxes in Figs. 3(a) and 3(b)]. We have therefore used the $1D_{\frac{1}{2}}$ relativistic kinetic EUTERPE code [20], in the boosted frame [21], to select the macroparticles passing through these areas at these times. The trajectories along x of the filtered macroparticles corresponding to Brunel electrons involved in ROM and CWE are, respectively, shown in Figs. 3(c) and 3(e), for two laser intensities in each case.

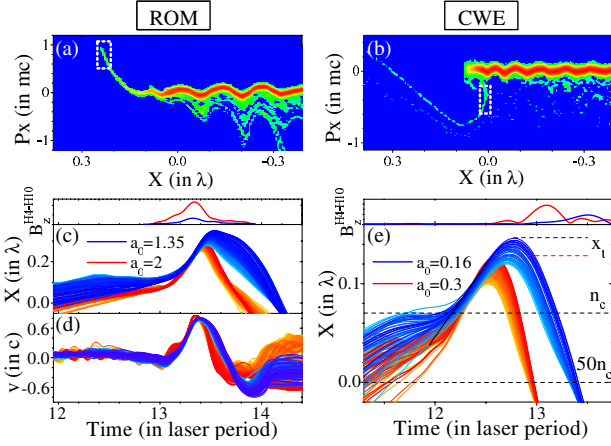


FIG. 3 (color online). (a)–(b) $x - p_x$ phase-space densities of plasma electrons at two different times, corresponding, respectively, to (a) the frequency upshift of the reflected light by relativistic outgoing Brunel electrons, and (b) to the penetration of Brunel electrons in the density gradient. In the lower graphs, electrons occupying the areas in the white dashed boxes have been selected. (c) Trajectories and (d) velocity v (along specular direction) of Brunel electrons responsible for ROM harmonics (fixed ions with imposed gradient of $L = \lambda/30$). (e) Trajectories of Brunel electrons triggering plasma oscillations (same conditions with $L = \lambda/60$). In each case, two sets of trajectories are shown, corresponding to two laser intensities. The upper panels show the amplitude of the magnetic field B of the corresponding attosecond pulses.

As far as ROM is concerned, outgoing Brunel electrons always reach their maximum velocity at the same instant of the laser optical cycle [Fig. 3(d)], whatever the laser intensity. This is why the emission time of ROM attosecond pulses does not vary with intensity [upper panel in Figs. 3(c) and 3(d)]. In contrast, in CWE, the instant where Brunel electrons reach the dense part of the plasma depends on the laser intensity [Fig. 3(e)]. The time where plasma oscillations are triggered therefore also depends on intensity, and so does the emission time of the CWE attosecond pulse they emit [upper panel in Fig. 3(e)].

In [6,9], we suggested that the variable delay in the emission time of CWE attosecond pulses could be accumulated once Brunel electrons propagate in the overdense part of the plasma, with a velocity that depends on laser intensity [22]. In Fig. 3(e), this effect only accounts for about 40% of the final delay. The other contribution to the delay comes from the fact that the turning point x_t of Brunel electrons [Fig. 3(e)] goes further toward vacuum as intensity goes down. Because of this larger excursion, Brunel electrons return later to the dense part of the plasma for decreasing intensities. PIC simulations show that the relative contribution of these two effects depends on the gradient scale length L , the effect of the varying excursion becoming dominant for $L \lesssim \lambda/60$.

From this study, it clearly appears that high-order harmonics from PMs provide a unique wealth of information on the dynamics of the laser-plasma interaction, partly encoded in their phase properties. These phase properties, and hence the characteristics of the associated XUV light beam, can be coherently controlled through the phase of the driving laser field. As far as applications are concerned, this work shows that ROM in the moderately relativistic interaction regime present several advantages over CWE: in addition to a greater spectral extension, the associated harmonics should have a smaller divergence and a better transverse coherence, due to their negligible intrinsic phase.

We gratefully acknowledge E. Lefebvre for providing the code CALDER and for his assistance on using this code, as well as P. d'Oliveira, F. Réau, and M. Bougeard for their precious technical support.

- [1] P. Agostini and L. DiMauro, Rep. Prog. Phys. **67**, 813 (2004).
- [2] B. Dromey *et al.*, Nature Phys. **2**, 456 (2006); Phys. Rev. Lett. **99**, 085001 (2007).
- [3] Y. Mairesse *et al.*, Science **302**, 1540 (2003).
- [4] K. Varju *et al.*, J. Mod. Opt. **52**, 379 (2005); Phys. Rev. Lett. **95**, 243901 (2005).
- [5] L. Plaja, L. Roso, K. Rzaewski, and M. Lewenstein, J. Opt. Soc. Am. B **15**, 1904 (1998).
- [6] C. Thaury *et al.*, Nature Phys. **3**, 424 (2007).
- [7] A. Tarasevitch, K. Lobov, C. Wunsche, and D. von der Linde, Phys. Rev. Lett. **98**, 103902 (2007).
- [8] U. Teubner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 185001 (2004).
- [9] F. Quéré *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 125004 (2006).
- [10] S. V. Bulanov *et al.*, Phys. Plasmas **1**, 745 (1994).
- [11] R. Lichters and J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, Phys. Plasmas **3**, 3425 (1996).
- [12] F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
- [13] Because plasma mirrors have extremely sharp density gradients, resonance absorption does not occur.
- [14] S. Gordienko, A. Pukhov, O. Shorokhov, and T. Baeva, Phys. Rev. Lett. **93**, 115002 (2004).
- [15] E. Lefebvre *et al.*, Nucl. Fusion **43**, 629 (2003).
- [16] Simulations show that, in the *ultrarelativistic* regime, the emission time of ROM attosecond pulses depends on intensity. D. an der Brügge and A. Pukhov, Phys. Plasmas **14**, 093104 (2007).
- [17] This excludes coherent transition radiation as the emission mechanism, because this process would also occur for a steplike density gradient.
- [18] Z. Chang *et al.*, Phys. Rev. A **58**, R30 (1998).
- [19] A. Lévy *et al.*, Opt. Lett. **32**, 310 (2007).
- [20] G. Bonnaud and C. Reisse, Nucl. Fusion **26**, 633 (1986).
- [21] P. Gibbon and A.R. Bell, Phys. Rev. Lett. **68**, 1535 (1992).
- [22] A similar effect for harmonics emitted from the rear side of thin foils is discussed on p. 7 of K. Eidmann *et al.*, Phys. Rev. E **72**, 036413 (2005).

Coherent dynamics of plasma mirrors

C. THAURY¹, H. GEORGE¹, F. QUÉRÉ^{1*}, R. LOCH², J.-P. GEINDRE³, P. MONOT¹ AND PH. MARTIN¹

¹CEA, IRAMIS, Service des Photons Atomes et Molécules, F-91191 Gif-sur-Yvette, France

²Laser Physics and Nonlinear Optics Group, Faculty of Science and Technology, MESA⁺ Institute for Nanotechnology, University of Twente, The Netherlands

³Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, CNRS, Ecole Polytechnique, 91 128 Palaiseau, France

*e-mail: fabien.quere@cea.fr

Published online: 8 June 2008; doi:10.1038/nphys986

Coherent ultrashort X-ray pulses provide new ways to probe matter and its ultrafast dynamics^{1–3}. One of the promising paths to generate these pulses consists of using a nonlinear interaction with a system to strongly and periodically distort the waveform of intense laser fields, and thus produce high-order harmonics. Such distortions have so far been induced by using the nonlinear polarizability of atoms, leading to the production of attosecond light bursts⁴, short enough to study the dynamics of electrons in matter³. Shorter and more intense attosecond pulses, together with higher harmonic orders, are expected^{5,6} by reflecting ultraintense laser pulses on a plasma mirror—a dense ($\approx 10^{23}$ electrons cm^{-3}) plasma with a steep interface. However, short-wavelength-light sources produced by such plasmas are known to generally be incoherent⁷. In contrast, we demonstrate that like in usual low-intensity reflection, the coherence of the light wave is preserved during harmonic generation on plasma mirrors. We then exploit this coherence for interferometric measurements and thus carry out a first study of the laser-driven coherent dynamics of the plasma electrons.

One of the challenges of high-order harmonic generation (HHG), beyond the production of very high orders with good efficiencies, is to preserve the initial properties of the laser beam in this frequency conversion process. In particular, keeping a high degree of coherence is essential for many applications, such as coherent imaging⁸. This has already been shown to be possible for HHG in gases⁹, but remains an open question for dense plasmas.

In this case, an intense laser pulse interacts with an initially solid target, and creates a dense reflective plasma at the surface. In an early study using picosecond laser pulses¹⁰, interference measurements in the far-field using Young slits suggested that the coherence of the light field in the source plane was lost in interaction with such an extremely dense and hot (a few 10^6 K) plasma, for instance through stochastic processes or plasma instabilities. This conclusion was consistent with the observation of an uncollimated harmonic emission. Here, we demonstrate that such deleterious effects can be avoided using well-controlled interaction conditions, that is, ultrashort (< 100 fs) laser pulses with a high temporal contrast. In these conditions, the plasma hardly has time to expand during the interaction (density gradient scale length $L \ll \lambda/10$, with λ being the laser wavelength), and thus behaves as a high-flatness mirror—a plasma mirror¹¹. We then exploit the coherence of the produced harmonics to study the dynamics of plasma electrons on the attosecond timescale.

Our experiment uses 60 fs pulses with a high temporal contrast (10^{10} on the nanosecond timescale), to produce high-order harmonics on plasma mirrors through coherent wake emission¹² (CWE), at intensities from a few 10^{16} W cm^{-2} to a few 10^{17} W cm^{-2} .

Groups of harmonics in the beam diverging from the plasma mirror are selected with different kinds of thin metallic filter, and the resulting spatial profile in the far-field is then measured at a distance $D = 38$ cm from the source (see the Methods section). It has already been shown that collimated beams of extreme-ultraviolet light are obtained in such an interaction regime¹¹, but this result alone does not guarantee a good spatial coherence of the harmonics¹³.

We have implemented a new and remarkably simple technique to study this issue. A transmission grating is placed into the beam before focusing (Fig. 1a). It is designed in such a way that at the focus of the beam, diffraction produces a central focal spot surrounded by two slightly weaker satellite spots at a distance $a = 40$ μm . Temporally synchronized and phase-locked laser pulses reach these three spatially separated foci of identical shape. High-order harmonics are generated on each focal spot on reflection onto a plasma mirror.

When measuring the spatial profile of the harmonic beam in the far-field, fringes with an almost perfect contrast can be observed, which result from the interferences between the three spatially separated extreme-ultraviolet sources (Fig. 1b,c). This simple result demonstrates the mutual coherence of several harmonic sources generated on a plasma mirror. It establishes that, although it involves a highly complex medium, the HHG mechanism is coherent, that is, it preserves the phase properties of the incident light. This is, to the best of our knowledge, the first direct proof of the intrinsic coherence of a frequency up-conversion process in such a dense plasma. Such mutually coherent short-wavelength sources can be exploited in applications such as time-resolved interferometry¹⁴, holography or high-resolution Ramsey spectroscopy¹⁵. This essential property adds to the recent surge of results obtained on this light source^{5,6,11,16,17}, showing that plasma mirrors are a very promising path to coherent ultrashort and intense X-ray pulses.

These measurements involve the interference of several harmonic sources driven at different laser intensities. Changes in laser intensity I imply variations in the dynamics of the system, and hence in the temporal properties of the radiated harmonic field. In particular, the spectral phase ϕ_ω of the harmonics generally depends on laser intensity^{18–20}. Interferograms such as the one shown in Fig. 1b can provide information on $\phi_\omega(I)$, and hence on the laser-driven coherent dynamics of the plasma electrons. In addition, knowledge of this intensity-dependent phase is essential to understand the properties of any laser-driven harmonic source. Indeed, because high laser intensities are required, HHG occurs around the focus of ultrashort laser pulses, and the laser intensity thus has strong spatial and temporal variations. These lead to non-trivial spatial and temporal phases of the harmonics, which

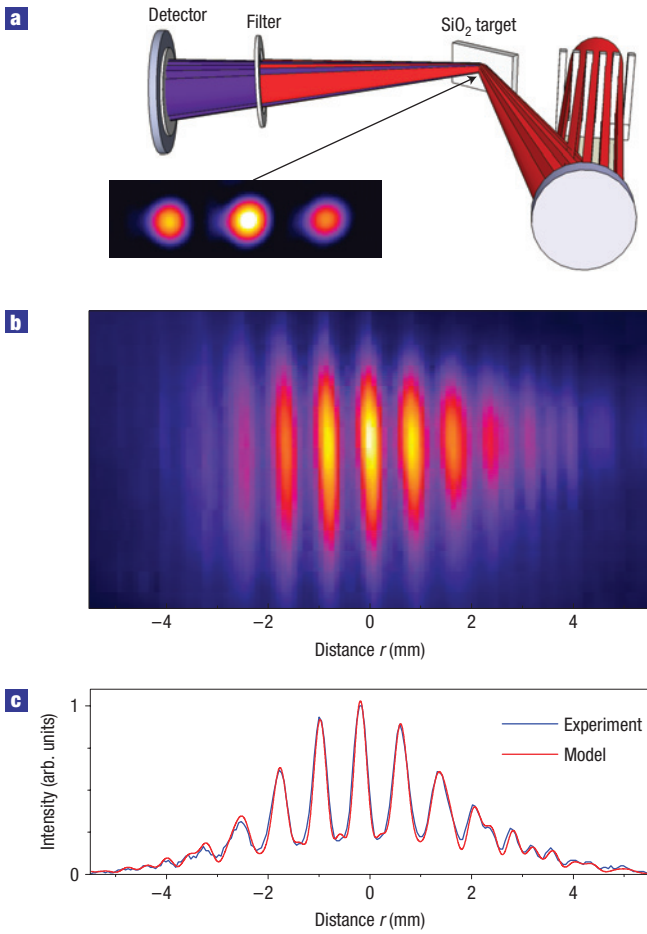


Figure 1 Coherent harmonic beams from plasma mirrors. **a**, Experimental set-up, and intensity distribution in the focal plane. In this case, the intensity ratio between the central and lateral spots is 0.57. **b**, Single-shot far-field interference pattern of harmonics 8–10. **c**, Lineout of the fringes and theoretical fit with phase shifts $\Delta\Phi_\omega = 0.23\omega/\omega_L$ rad.

affect the divergence and spectral width, as well as the exact coherence degree of the source^{20,21}.

In the case of three sources of different intensities shown in Fig. 1a, the interference pattern in the far-field is given by the following elementary equation (see the Supplementary Information)

$$I(\mathbf{r}) = \int d\omega I_\omega F_\omega(\mathbf{r}) [I_\omega^0 + I_\omega^1(\mathbf{r}) + I_\omega^2(\mathbf{r})] \quad (1)$$

$$I_\omega^0 = 1 + 2\alpha_\omega$$

$$I_\omega^1(\mathbf{r}) = 4\sqrt{\alpha_\omega} \cos(\Delta\Phi_\omega) \cos(\mathbf{k}_\omega \mathbf{r})$$

$$I_\omega^2(\mathbf{r}) = 2\alpha_\omega \cos(2\mathbf{k}_\omega \mathbf{r}),$$

where $\mathbf{k}_\omega = (\omega/cD)\mathbf{a}$ (with c being the speed of light and \mathbf{a} being the vector joining the central focal spot to a lateral one), I_ω is the harmonic spectral intensity and $F_\omega(\mathbf{r})$ is the spatial intensity profile of frequency ω in the detection plane for a single focal spot. α_ω is the intensity ratio between the central harmonic source and the two lateral ones, and $\Delta\Phi_\omega = \phi_\omega(I) - \phi_\omega(\alpha_{\omega_L} I)$ is the phase shift

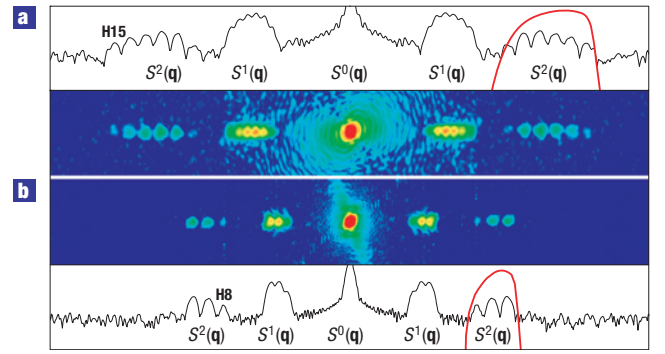


Figure 2 Spectra $S(\mathbf{q})$ of two single-shot interferograms (in log scale). **a**, Case where harmonics 10–15 are selected using a 200-nm-thick tin filter. **b**, Case where harmonics 8–10 are selected with a 200-nm-thick indium filter. The transmission curves of these filters are shown as red lines around the $S^2(\mathbf{q})$ term. In both cases, the generation is based on CWE on a silica target, and $\alpha_{\omega_L} = 0.57$.

between these sources for frequency ω (where ω_L is the driving laser frequency, and I and $\alpha_{\omega_L} I$ are the peak laser intensities for the central and lateral spots, respectively). No phase shift occurs between the two lateral harmonic sources, as they are generated at the same laser intensity. Using this simple formula, perfect fits of the experimental data can be obtained, as shown in Fig. 1c.

Equation (1) shows that the interference pattern contains two sets of fringes for each ω , with spatial frequencies $|\mathbf{k}_\omega|$ and $2|\mathbf{k}_\omega|$. Fringes of frequency $|\mathbf{k}_\omega|$ correspond to the interference of the central harmonic source with either of the two lateral ones, whereas those of frequency $2|\mathbf{k}_\omega|$ correspond to the interference between the two outer sources. In usual two-source interferometry, phase terms are encoded in shifts of the fringes. Because of the symmetry of the present configuration with three sources, the phase shift $\Delta\Phi_\omega$ affects the contrast of the $|\mathbf{k}_\omega|$ fringes, but not their positions.

To further analyse these interferograms, we calculate the Fourier transform $S(\mathbf{q})$ of $I(\mathbf{r})$ with respect to \mathbf{r}

$$S(\mathbf{q}) = \int d\omega I_\omega [S_\omega^0(\mathbf{q}) + S_\omega^1(\mathbf{q}) + S_\omega^2(\mathbf{q})] \quad (2)$$

$$S_\omega^0(\mathbf{q}) = (1 + 2\alpha_\omega) \tilde{F}_\omega(\mathbf{q})$$

$$S_\omega^1(\mathbf{q}) = 2\sqrt{\alpha_\omega} \cos(\Delta\Phi_\omega) [\tilde{F}_\omega(\mathbf{q} - \mathbf{k}_\omega) + \tilde{F}_\omega(\mathbf{q} + \mathbf{k}_\omega)]$$

$$S_\omega^2(\mathbf{q}) = \alpha_\omega [\tilde{F}_\omega(\mathbf{q} - 2\mathbf{k}_\omega) + \tilde{F}_\omega(\mathbf{q} + 2\mathbf{k}_\omega)],$$

where $\tilde{F}_\omega(\mathbf{q})$ is the spatial Fourier transform of $F_\omega(\mathbf{r})$, whereas $S_\omega^1(\mathbf{q})$ and $S_\omega^2(\mathbf{q})$ are the Fourier transforms of the two sets of fringes discussed previously.

The total signal is the incoherent superposition of the interferograms corresponding to each frequency ω (equations (1) and (2)). As each frequency leads to a different fringe spacing, the $S_\omega^1(\mathbf{q})$ or $S_\omega^2(\mathbf{q})$ terms in the Fourier transform of the interferogram provide the extreme-ultraviolet spectrum I_ω , convoluted with $\tilde{F}_\omega(\mathbf{q})$. This set-up thus constitutes a remarkably simple and cheap single-shot Fourier spectrometer in the extreme-ultraviolet region. This is shown in Fig. 2, where two filters have been used to select different groups of harmonics. Its spectral resolution depends on the harmonic beam profile through $\tilde{F}_\omega(\mathbf{q})$, and increases with the divergence of this beam.

Equation (2) also shows that the phase shift $\Delta\Phi_\omega$ between the central and lateral sources is encoded in the magnitude of the $S_\omega^1(\mathbf{q})$

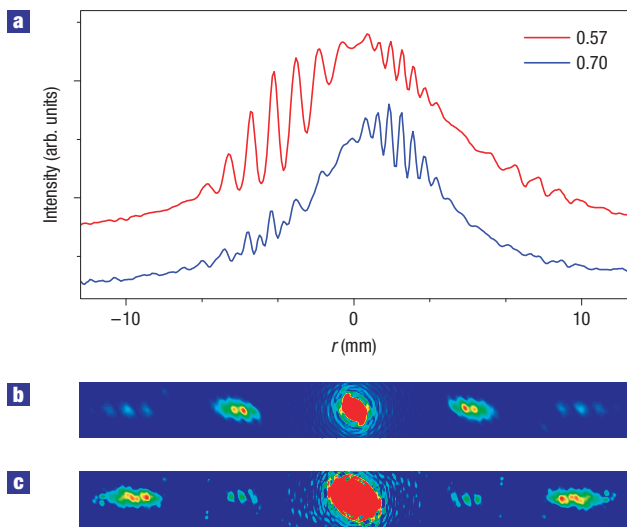


Figure 3 Effect of the phase shift $\Delta\phi_\omega$ on the interferogram. **a**, Lineouts of two single-shot interferograms, for two intensity ratios α_{ω_L} of 0.57 and 0.7 (corresponding to slit widths of the grating of respectively 4 mm and 3.2 mm). The fringe pattern is different from the one shown in Fig. 1c, because of the larger numerical aperture ($f/12$ instead of $f/17$) of the laser beam, which leads to a larger divergence of the harmonic beam and hence a wider interference field. **b, c**, Fourier transforms $S(\mathbf{q})$ of the corresponding interferograms (on a linear scale), showing the large change in relative weight of the $S^1_\omega(\mathbf{q})$ and $S^2_\omega(\mathbf{q})$ terms when $\Delta\phi_\omega$ goes from $\approx\pi$ (**b**, $\alpha_{\omega_L} = 0.57$) to $\approx\pi/2$ (**c**, $\alpha_{\omega_L} = 0.7$).

term in the spectrum $S(\mathbf{q})$. To illustrate the influence of $\Delta\phi_\omega$, we have varied its value by changing α_{ω_L} , the intensity ratio for the driving laser (Fig. 3). This is achieved by changing the width l of the slits in the transmission grating. The case where $\Delta\phi_\omega \approx \pi/2$ leads to particularly striking effects on the interferogram. In this case, the $S^1_\omega(\mathbf{k}_\omega)$ term in $S(\mathbf{q})$ is close to zero and fringes of frequency $|\mathbf{k}_\omega|$, which usually dominate the interferogram, now almost completely disappear, whereas the $2|\mathbf{k}_\omega|$ fringes keep a good contrast. We extract $\Delta\phi_\omega$ from the spectrum $S(\mathbf{q})$ (see the Methods section and Supplementary Information) using the ratio:

$$R_\omega = S(\mathbf{k}_\omega)/S(2\mathbf{k}_\omega) \approx S^1_\omega(\mathbf{k}_\omega)/S^2_\omega(2\mathbf{k}_\omega) = 2\cos(\Delta\phi_\omega)/\sqrt{\alpha_\omega}. \quad (3)$$

The results of this measurement are shown in Fig. 4, for harmonics 11, 12 and 13, and for different intensity ratios α_{ω_L} corresponding to different l .

$\Delta\phi_\omega$ decreases from $\approx\pi$ to slightly less than $\pi/2$ as the laser intensity ratio α_{ω_L} goes from about 0.57 to 0.74. For each α_{ω_L} , the phase shift $\Delta\phi_\omega$ between the central harmonic source and the two lateral ones is observed to vary linearly with harmonic frequency ω (Fig. 4a). A linear phase shift $\Delta\phi_\omega$ corresponds to a simple translation by $\tau = \Delta\phi_\omega/\omega$ in the time domain. In other words, these results show that the light fields $E^0(t)$ and $E^1(t)$, corresponding to the superposition of harmonics 11–13, emitted respectively by the central and lateral sources, are identical and simply shifted in time by a delay τ , that is, $E^0(t) = E^1(t + \tau)$. Figure 4b shows that τ decreases as intensity ratio α_{ω_L} gets closer to 1, as expected. These delays are smaller than 100 as: this remarkable sensitivity of the method comes from the fact that the contrast of the $|\mathbf{k}_\omega|$ fringes goes from maximum to zero for a change of only $\pi/2$ of the phase of harmonic n (Fig. 3), corresponding to a

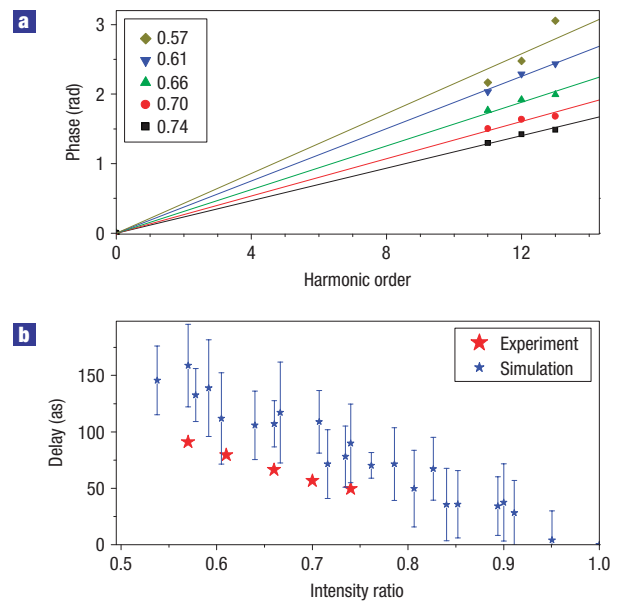


Figure 4 Relative phases $\Delta\phi_\omega$ between the central and lateral sources.

a, Phase shift plotted as a function of the harmonic order (for orders 11–13), for different laser intensity ratios α_{ω_L} , the values of which are given in the legend. Each point is an average over five laser shots, and has an uncertainty of $\approx 10\%$. The lines are linear fits, $\Delta\phi_\omega = \omega\tau$. **b**, The delay τ deduced from these data as a function of α_{ω_L} . These measurements are compared with the results of PIC simulations carried out at different laser intensities. In this case, the error bars correspond to the fluctuations in delay between pairs of attosecond pulses in the two trains (see the Supplementary Information).

shift in time of $T_L/4n$, with $n \approx 10$ and $T_L = 2.6$ fs for an 800 nm laser field.

Numerical simulations with particle-in-cell (PIC) codes provide a physical interpretation of this delay τ (ref. 20). In CWE, trains of attosecond pulses are emitted by collective electron oscillations at the plasma–vacuum interface, which are triggered once every optical cycle in the wake of electron bunches¹². These electron bunches are formed as the electric field pulls some electrons into vacuum, and then, when it changes sign, pushes them back into the overdense plasma^{22,23}. When the peak intensity of the laser pulse is changed, the return time of these so-called ‘Brunel electrons’ to the plasma changes by a fraction of the laser optical period. The same time shift is transferred to the attosecond pulses. According to simulations, this is the main effect of an intensity variation of the driving laser on the attosecond pulse train.

The delay associated with this effect, obtained from one-dimensional PIC simulations, is shown in Fig. 4, as a function of the intensity ratio α_{ω_L} . It differs from the experimental values by a factor 1.6, but the evolutions with α_{ω_L} are similar. This qualitative agreement is satisfactory, as a PIC code is only a model of the actual plasma, which does not take all physical processes into account (for example, collisions). For instance, whereas the expansion of the plasma is only approximately reproduced by PIC simulations, the delay τ depends on the length and shape of the density gradient at the plasma–vacuum interface. This comparison with simulations shows that our measurements give access to the change in return time of Brunel electrons with laser intensity, with sublaser cycle temporal resolution.

In the past 15 years, HHG from gases has been instrumental in providing a comprehensive understanding of the interaction

of intense lasers with atoms and molecules^{3,4}. Our measurements show that HHG from plasma mirrors can be used in a similar way as a probe of the coherent dynamics of plasmas driven by high-intensity lasers. Fully exploiting this new probe will require measurements of the harmonic field with attosecond resolution. Attosecond pulses can be generated not only when electrons return to the plasma (CWE), but also when they escape towards vacuum and reach relativistic velocities, thus inducing a Doppler upshift of the reflected light^{11,24,25}. Measurements of the attosecond pulse trains associated with these two processes, and of their timing with respect to the driving laser optical cycle, should thus provide direct insight into the different stages of sublaser cycle electron dynamics. Studying this dynamics is essential for a proper understanding of many phenomena in laser–plasma physics, such as ion or electron acceleration, or short-wavelength-light generation, either by HHG or other mechanisms such as $K\alpha$ emission²⁶. From the point of view of applications, demonstrating the coherent character of HHG from plasma mirrors, as we have done here for CWE, is an important step for the development of this ultrashort-light source. Obtaining extremely short wavelengths will require the use of the Doppler effect occurring at higher intensities. Although this remains to be established experimentally, the coherence of the light beam is also expected to be preserved in this process²⁰.

METHODS

EXPERIMENTAL SET-UP

We use 60 fs, 10 TW pulses delivered by a chirped-pulse-amplification titanium–sapphire laser. A double-plasma-mirror optical switch is used at the output of the laser chain to improve the temporal contrast ratio by four orders of magnitude²⁷. A transmission grating, consisting of a frosted-glass comb of 1 cm periodicity, with 4-mm-wide slits, is placed into the beam. To vary the effective slit width, a second identical grating is placed behind the first one and translated horizontally. This beam is then focused with an off-axis parabolic mirror of 500 mm focal length, with a numerical aperture that can be varied from $f/10$ to $f/25$ (corresponding to beam diameters of 50–20 mm). Diffraction from this grating leads, at the laser focus, to three main focal spots separated by $a = 40 \mu\text{m}$. For a slit width of 4 mm, the intensity ratio between the central spot and the lateral ones is 0.57.

Harmonics of the 800 nm incident laser field are generated on reflection on a bulk silica target at 45° incidence, by the CWE mechanism¹². 15 cm away from the target, the beam reflects on two plates with an anti-reflection coating at the laser wavelength (not shown in Fig. 1a). This eliminates most of the fundamental light. Different groups of harmonics can then be selected using filters. The resulting extreme-ultraviolet beam is detected at $D = 38$ cm from the source, using double-stage microchannel plates coupled to a phosphor screen, the fluorescence of which is imaged on a CCD (charge-coupled device) camera. The total spatial resolution of the set-up is estimated to be $90 \mu\text{m}$, which is high enough to properly resolve the fringe pattern of a few hundred microns periodicity.

DATA ANALYSIS

From the interferograms, we calculate $\cos(\Delta\phi_\omega)$ using the ratio R_ω defined in equation (3). This requires knowledge of the intensity ratio α_ω (equation (3)). To this end, we have measured the dependence of the harmonic signal on the laser intensity (see Supplementary Information, Fig. S1), and use these data to deduce α_ω from α_{ω_L} , the intensity ratio for the incident laser field, which is easily and accurately calculated from the characteristics of the grating using diffraction theory. The value of $\cos(\Delta\phi_\omega)$ provides $|\Delta\phi_\omega + 2n\pi|$. The sign of $\Delta\phi_\omega$ is determined from numerical simulations, and the value of n is determined from the measured divergence of the harmonic beam (see Fig. 1c and Supplementary Information).

PIC SIMULATIONS

We use the one-dimensional PIC code EUTERPE (ref. 28). The results of Fig. 4 were obtained from simulations where both ions and electrons are mobile. We start with an infinitely steep plasma–vacuum interface, and initial ion and electron temperatures of 0.1 and 0.5 keV, respectively. Collisions are not taken into account. The plasma density is $110n_c$. The maximum intensity that we used is $I\lambda^2 = 1.2 \times 10^{17} \text{ W cm}^{-2} \mu\text{m}^{-2}$, and the intensities for the other simulations were deduced from this value using the ratio α_{ω_L} . We filter a group of harmonics in the spectrum of the pulse reflected from the plasma, to obtain a train of attosecond pulses in the time domain, and then measure the temporal position of the peak of each of these attosecond pulses. The data in Fig. 4 correspond to the average value of the delay between attosecond pulses in two trains generated at two different laser intensities.

Received 13 February 2008; accepted 8 May 2008; published 8 June 2008.

References

- Chapman, H. N. *et al.* Femtosecond time-delay X-ray holography. *Nature* **448**, 676–679 (2007).
- Cavalieri, A. L. *et al.* Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature* **449**, 1029–1032 (2007).
- Corkum, P.B. & Krausz, F. Attosecond science. *Nature Phys.* **3**, 381–387 (2007).
- Agostini, P. & DiMauro, L. The physics of attosecond pulses. *Rep. Prog. Phys.* **67**, 813–855 (2004).
- Dromey, B. *et al.* High harmonic generation in the relativistic limit. *Nature Phys.* **2**, 456–459 (2006).
- Tsakis, G., Eidmann, K., Meyer-ter-Vehn, J. & Krausz, F. Route to intense single attosecond pulses. *New J. Phys.* **8**, 19 (2006).
- Murnane, M. M., Kapteyn, H. C., Gordon, S.P. & Falcone, R.W. Ultrashort X-ray pulses. *Appl. Phys. B* **58**, 261–266 (1994).
- Chapman, H. N. *et al.* Femtosecond diffractive imaging with a soft-X-ray free-electron laser. *Nature Phys.* **2**, 839–843 (2006).
- Le Deroff, L. *et al.* Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a Fresnel-mirror interferometer. *Phys. Rev. A* **61**, 043802 (2000).
- Zhang, J. *et al.* Coherence and bandwidth measurements of harmonics generated from solid surfaces irradiated by intense picosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **54**, 1597–1603 (1996).
- Thaury, C. *et al.* Plasma mirrors for ultrahigh intensity optics. *Nature Phys.* **3**, 424–429 (2007).
- Quéré, F. *et al.* Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 125004 (2006).
- Collett, E. & Wolf, E. Is complete spatial coherence necessary for the generation of highly directional light beams? *Opt. Lett.* **2**, 27–29 (1978).
- Salieres, P. *et al.* Frequency-domain interferometry in the XUV with high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5483–5486 (1999).
- Cavalieri, S. *et al.* Ramsey-type spectroscopy with high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 133002 (2002).
- Gordienko, S., Pukhov, A., Shorokhov, O. & Baeva, T. Relativistic Doppler effect: Universal spectra and zeptosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 115002 (2004).
- Dromey, B. *et al.* Bright multi-keV harmonic generation from relativistically oscillating plasma surfaces. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 085001 (2007).
- Lewenstein, M., Salieres, P. & L'Huillier, A. Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A* **52**, 4747–4754 (1995).
- Corsi, C. *et al.* Direct interferometric measurement of the atomic dipole phase in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 023901 (2006).
- Quéré, F. *et al.* Phase properties of high-order harmonics reflected from plasma mirrors. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 095004 (2008).
- Zerne, R. *et al.* Phase-locked high-order harmonic sources. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1006–1009 (1997).
- Brunel, F. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52–55 (1987).
- Bonnaud, G., Gibbon, P., Kindel, J. & Williams, E. Laser interaction with a sharp-edged overdense plasma. *Laser Part. Beams* **9**, 339–354 (1991).
- Bulanov, S. V., Naumova, N. M. & Pegoraro, F. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser-pulse with an overdense plasma. *Phys. Plasmas* **1**, 745–757 (1994).
- Lichters, R., Meyer-ter-Vehn, J. & Pukhov, A. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Phys. Plasmas* **3**, 3425–3437 (1996).
- Rischel, C. *et al.* Femtosecond time-resolved X-ray diffraction from laser-heated organic films. *Nature* **390**, 490–492 (1997).
- Lévy, A. *et al.* Double plasma mirror for ultrahigh temporal contrast ultraintense laser pulses. *Opt. Lett.* **32**, 310–312 (2007).
- Bonnaud, G. & Reisse, C. Particle code study of the influence of non-monochromaticity of laser light on stimulated Raman scattering in laser-irradiated plasmas. *Nucl. Fusion* **26**, 633–646 (1986).

Supplementary Information accompanies this paper on www.nature.com/naturephysics.

Acknowledgements

Financial support from Agence Nationale pour la Recherche, through program BLAN06 – 3.134072 (ILAR), is gratefully acknowledged.

Author contributions

Idea and experiment design by F.Q. and C.T.; measurements by C.T., H.G., R.L. and F.Q.; data analysis by C.T., F.Q. and J.-P.G.; P.M. and Ph.M. contributed to scientific discussions and support; paper written by F.Q., C.T. and H.G.

Author information

Reprints and permission information is available online at <http://npg.nature.com/reprintsandpermissions>. Correspondence and requests for materials should be addressed to F.Q.

Bibliographie

- [1] Galilée. *Discours concernant deux sciences nouvelles*. Presses Universitaires Françaises, 1998.
- [2] S. Drake. The role of music in galileo's experiments. *Scientific American*, 3 : 98–104, 1975.
- [3] T. Brabec and F. Krausz. Intense few-cycle laser fields : Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, 72 :545, 2000.
- [4] F. Krausz and M. Ivanov. Attosecond physics. *Reviews of Modern Physics*, 81 : 163–234, January 2009.
- [5] J. J. Rocca. Table-top soft x-ray lasers. *Review of Scientific Instruments*, 70 : 3799–3827, October 1999.
- [6] A. A. Zholents and W. M. Fawley. Proposal for Intense Attosecond Radiation from an X-Ray Free-Electron Laser. *Physical Review Letters*, 92(22) :224801–+, June 2004.
- [7] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414 :509–513, November 2001.
- [8] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini. Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation. *Science*, 292 :1689–1692, June 2001.
- [9] T. W. Hansch. A proposed sub-femtosecond pulse synthesizer using separate phase-locked laser oscillators. *Optics Communications*, 80 :71–75, December 1990.
- [10] Gy. Farkas and Cs. Tóth. Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases. *Phys. Lett. A*, 168 :447, 1992.
- [11] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, and T. S. Luk. Studies of multi-photon production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 4 :595–601, April 1987.
- [12] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 21 :L31–L35, February 1988.
- [13] P. Antoine, A. L'Huillier, and M. Lewenstein. Attosecond Pulse Trains Using High-Order Harmonics. *Physical Review Letters*, 77 :1234–1237, August 1996.

- [14] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov. Subfemtosecond pulses. *Optics Letters*, 19 :1870–1872, November 1994.
- [15] M. Ivanov, P. B. Corkum, T. Zuo, and A. Bandrauk. Routes to Control of Intense-Field Atomic Polarizability. *Physical Review Letters*, 74 :2933–2936, April 1995.
- [16] E. Constant, V.D. Taranukhin, A. Stolow, and P.B. Corkum. Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses. *Phys. Rev. A*, 56 :3870–3878, November 1997.
- [17] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec. Attosecond Cross Correlation Technique. *Physical Review Letters*, 86 :412–415, January 2001.
- [18] Y. Mairesse and F. Quéré. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Physical Review A*, 71(1) :011401, January 2005.
- [19] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71 :1994–1997, September 1993.
- [20] P. B. Corkum and F. Krausz. Attosecond science. *Nature Physics*, 3 :381–387, June 2007.
- [21] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg. Single-Cycle Nonlinear Optics. *Science*, 320 :1614, June 2008.
- [22] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 419 :803–807, October 2002.
- [23] M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, A. J. Verhoef, V. Yakovlev, M. F. Kling, J. Rauschenberger, N. M. Kabachnik, H. Schröder, M. Lezius, K. L. Kompa, H.-G. Muller, M. J. J. Vrakking, S. Hendel, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature*, 446 :627–632, April 2007.
- [24] A. L. Cavalieri, N. Müller, T. Uphues, V. S. Yakovlev, A. Baltuška, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blümel, R. Holzwarth, S. Hendel, M. Drescher, U. Kleineberg, P. M. Echenique, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Heinzmann. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, 449 :1029–1032, October 2007.
- [25] L. Plaja, L. Roso, K. Rzazewski, and M. Lewenstein. Generation of attosecond pulse trains during the reflection of a very intense laser on a solid surface. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 15 :1904–1911, July 1998.
- [26] F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, P. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert. Coherent Wake Emission of High-Order Harmonics from Overdense Plasmas. *Physical Review Letters*, 96(12) :125004, March 2006.
- [27] C. Thaury, F. Quéré, J.-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. D’Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and P. Martin. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nature Physics*, 3 :424–429, June 2007.
- [28] R. Trebino, editor. *Frequency-Resolved Optical Gating*. Kluwer Academic Publishers, 2000.

- [29] I. A. Walmsley and V. Wong. Characterization of the electric field of ultrashort optical pulses. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 13 : 2453–2463, November 1996.
- [30] V. Losovoi, I. A. Ushkov, E. A. Prokhorenko, M. Y. Schelev, and A. V. Smirnov. 200-femtosecond streak camera : development and dynamic measurements. In C. Cavaller, G. P. Haddleton, and M. Hugenschmidt, editors, *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, volume 4948 of *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, pages 297–304, July 2003.
- [31] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz. Observation of laser-assisted Auger decay in argon. *Physical Review Letters*, 73 :2180–2183, October 1994.
- [32] T. E. Glover, R. W. Schoenlein, A. H. Chin, and C. V. Shank. Observation of Laser Assisted Photoelectric Effect and Femtosecond High Order Harmonic Radiation. *Physical Review Letters*, 76 :2468–2471, April 1996.
- [33] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, A. Bouhal, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz. Cross-correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high-order harmonics. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 13 :197–200, January 1996.
- [34] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum, and F. Krausz. X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier. *Science*, 291 :1923–1927, March 2001.
- [35] J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Y. Ivanov, F. Krausz, and P. B. Corkum. Attosecond Streak Camera. *Physical Review Letters*, 88(17) :173903–+, April 2002.
- [36] A. M. Dykhne and G. L. Yudin. Stimulated effects upon "jarring" of an electron in an external electromagnetic field. *Soviet Physics Uspekhi*, 20 :80–86, January 1977.
- [37] A. M. Dykhne and G. L. Yudin. REVIEWS OF TOPICAL PROBLEMS : "Jar-ring" of a quantum system and the corresponding stimulated transitions. *Soviet Physics Uspekhi*, 21 :549–565, July 1978.
- [38] T. F. Gallagher. Above-threshold ionization in low-frequency limit. *Physical Review Letters*, 61 :2304–2307, November 1988.
- [39] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit. *Physical Review Letters*, 62 :1259–1262, March 1989.
- [40] F. Quéré, Y. Mairesse, and J. Itatani. Temporal characterization of attosecond XUV fields. *Journal of Modern Optics*, 52 :339–360, February 2005.
- [41] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Atomic transient recorder. *Nature*, 427 :817–821, February 2004.
- [42] E.M Kosik et al. *Ultrafast Optics IV*. Springer, New York, 2004. 283 pp.

- [43] C. Dorrer and I. Kang. Complete temporal characterization of short optical pulses by simplified chronocyclic tomography. *Optics Letters*, 28 :1481–1483, August 2003.
- [44] V. Vénier, R. Taïeb, and A. Maquet. Phase dependence of (N+1)-color ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics. *Phys. Rev. A*, 54 :721–728, July 1996.
- [45] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49 : 2117–2132, March 1994.
- [46] M. Kitzler, N. Milosevic, A. Scrinzi, F. Krausz, and T. Brabec. Quantum Theory of Attosecond XUV Pulse Measurement by Laser Dressed Photoionization. *Physical Review Letters*, 88(17) :173904–+, April 2002.
- [47] F. Quéré, J. Itatani, G. L. Yudin, and P. B. Corkum. Attosecond Spectral Shearing Interferometry. *Physical Review Letters*, 90(7) :073902–+, February 2003.
- [48] C. Iaconis and I. A. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Optics Letters*, 23 :792–794, May 1998.
- [49] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi. Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry. *Journal of the Optical Society of America (1917-1983)*, 72 :156–+, January 1982.
- [50] E. Cormier, I. A. Walmsley, E. M. Kosik, A. S. Wyatt, L. Corner, and L. F. Dimauero. Self-Referencing, Spectrally, or Spatially Encoded Spectral Interferometry for the Complete Characterization of Attosecond Electromagnetic Pulses. *Physical Review Letters*, 94(3) :033905–+, January 2005.
- [51] Y. Mairesse, O. Gobert, P. Breger, H. Merdji, P. Meynadier, P. Monchicourt, M. Perdrix, P. Salières, and B. Carré. High Harmonic XUV Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction. *Physical Review Letters*, 94 (17) :173903–+, May 2005.
- [52] D. J. Kane. Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 35 :421–431, April 1999.
- [53] C. Dorrer and I. Kang. Simultaneous temporal characterization of telecommunication optical pulses and modulators by use of spectrograms. *Optics Letters*, 27 : 1315–+, 2002.
- [54] M. D. Thomson, J. M. Dudley, L. P. Barry, and J. D. Harvey. Complete pulse characterization at 1.5 μm by cross-phase modulation in optical fibers. *Optics Letters*, 23 :1582–1584, October 1998.
- [55] Y. Mairesse. *Génération et caractérisation d’impulsions attosecondes*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, Juillet 2005.
- [56] H. Wang, M. Chini, S. D. Khan, S. Chen, S. Gilbertson, X. Feng, H. Mashiko, and Z. Chang. Practical issues of retrieving isolated attosecond pulses. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 42(13) :134007–+, July 2009.

- [57] I. Thomann, A. Bahabad, X. Liu, R. Trebino, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Characterizing isolated attosecond pulses from hollow-core waveguides using multi-cycle driving pulses. *Optics Express*, 17 :4611–+, March 2009.
- [58] J. Gagnon, E. Goulielmakis, and V. S. Yakovlev. The accurate FROG characterization of attosecond pulses from streaking measurements. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 92 :25–32, July 2008.
- [59] A. Baltuška, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, and F. Krausz. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421 :611–615, February 2003.
- [60] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Direct Measurement of Light Waves. *Science*, 305 :1267–1269, August 2004.
- [61] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, and M. Nisoli. Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses. *Science*, 314 :443–446, October 2006.
- [62] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières. Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays. *Science*, 302 :1540–1543, November 2003.
- [63] R. López-Martens, K. Varjú, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C.-G. Wahlström, and A. L’Huillier. Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses. *Physical Review Letters*, 94(3) :033001–+, January 2005.
- [64] Nam, C. H. and Kim, K. T. *X-ray lasers 2006*, chapter Temporal Characterization of Attosecond Harmonic Pulses, page 44. Springer, 2007.
- [65] I. Thomann, E. Gregonis, X. Liu, R. Trebino, A. S. Sandhu, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Temporal characterization of attosecond wave forms in the sub-optical-cycle regime. *Phys. Rev. A*, 78(1) :011806–+, July 2008.
- [66] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte, and G. D. Tsakiris. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 426 :267–271, November 2003.
- [67] T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai, and S. Watanabe. Nonlinear optics in the extreme ultraviolet. *Nature*, 432 :605–608, December 2004.
- [68] Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa. Interferometric Autocorrelation of an Attosecond Pulse Train in the Single-Cycle Regime. *Physical Review Letters*, 97(15) :153904–+, October 2006.
- [69] E. P. Benis, P. Tzallas, L. A. A. Nikolopoulos, M. Kovacev, C. Kalpouzos, D. Charalambidis, and G. D. Tsakiris. Frequency-resolved photoelectron spectra of two-

- photon ionization of He by an attosecond pulse train. *New Journal of Physics*, 8 : 92–+, June 2006.
- [70] A. Kosuge, T. Sekikawa, X. Zhou, T. Kanai, S. Adachi, and S. Watanabe. Frequency-Resolved Optical Gating of Isolated Attosecond Pulses in the Extreme Ultraviolet. *Physical Review Letters*, 97(26) :263901–+, December 2006.
 - [71] Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa. Conclusive Evidence of an Attosecond Pulse Train Observed with the Mode-Resolved Autocorrelation Technique. *Physical Review Letters*, 96 (8) :083901–+, February 2006.
 - [72] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, and G. D. Enright. Harmonic generation in CO₂ laser target interaction. *Applied Physics Letters*, 31 :172–174, August 1977.
 - [73] R. L. Carman, D. W. Forslund, and J. M. Kindel. Visible harmonic emission as a way of measuring profile steepening. *Physical Review Letters*, 46 :29, 1981.
 - [74] R. L. Carman, R. F. Benjamin, and C. K. Rhodes. Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in CO₂-laser-produced plasmas. *Physical Review A*, 24 :2649–2663, November 1981.
 - [75] B. Bezzerides, R. D. Jones, and D. W. Forslund. Plasma mechanism for ultraviolet harmonic radiation due to intense CO₂ light. *Physical Review Letter*, 49(3) :202–205, Jul 1982.
 - [76] C. Grebogi, V. K. Tripathi, and H.-H. Chen. Harmonic generation of radiation in a steep density profile. *Physics of Fluids*, 26 :1904–1908, July 1983.
 - [77] S. Kohlweyer, G. D. Tsakiris, C.-G. Wahlström, C. Tillman, and I. Mercer. Harmonic génération from solid-vacuum interface irradiated at high laser intensities. *Optics Communications*, 117 :431–438, 1995.
 - [78] D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke, P. Agostini, G. Grillon, E. Nibbering, A. Mysyrowicz, and A. Antonetti. Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses. *Physical Review A*, 52(1) :R25–R27, 1995.
 - [79] P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustazis, A. P. Fewes, J. Zhang, P. Lee, M. Baka-rezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark, and A. E. Dangor. Efficient extreme uv harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets. *Physical Review Letters*, 76 (11) :1832–1835, 1996.
 - [80] P. Gibbon. Harmonic generation by femtosecond laser-solid interaction : A coherent “water-window” light source ? *Physical Review Letter*, 76(1) :50–53, Jan 1996.
 - [81] G. A. Mourou, T. Tajima, and S. V. Bulanov. Optics in the relativistic regime. *Reviews of Modern Physics*, 78 :309–371, April 2006.
 - [82] H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, A. Szoke, and R. W. Falcone. Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering. *Optics Letters*, 16 :490–492, April 1991.

- [83] S. Backus, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, D. M. Gold, H. Nathel, and W. E. White. Prepulse suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering from a fluid target. *Optics Letters*, 18 :134–136, January 1993.
- [84] D. M. Gold. Direct measurement of prepulse suppression by use of a plasma shutter. *Optics Letters*, 19 :2006–2008, December 1994.
- [85] G Doumy. *Interaction laser matière à haut flux et fort contraste temporel*. PhD thesis, Ecole Polytechnique X, Janvier 2006.
- [86] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, Ph. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, J.-P. Geindre, and T. Wittmann. Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses. *Physical Review E*, 69(2) :026402, 2004.
- [87] A. Benuzzi-Mounaix, M. Koenig, J. M. Boudenne, T. A. Hall, D. Batani, F. Scianitti, A. Masini, and D. di Santo. Chirped pulse reflectivity and frequency domain interferometry in laser driven shock experiments. *Physical Review E*, 60 :2488–+, September 1999.
- [88] J.-P. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo, and J.-C. Gauthier. Single-shot spectral interferometry with chirped pulses. *Optics Letters*, 26 :1612–1614, October 2001.
- [89] P. Monot, G. Doumy, S. Dobosz, M. Perdrix, P. D’Oliveira, F. Quéré, F. Réau, Ph. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, and J. P. Geindre. High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma. *Optics Letter*, 29 :893, 2004.
- [90] A. Lévy, T. Ceccotti, P. D’Oliveira, F. Réau, M. Perdrix, F. Quéré, P. Monot, M. Bougeard, H. Lagadec, P. Martin, P. Audebert, and J.P. Geindre. Double plasma mirror for ultrahigh temporal contrast ultraintense. *Optics Letter*, 32(3) : 310, February 2007.
- [91] A Levy. *Accélération d’ions par interaction laser-matière en régime de ultra haut contraste laser*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, Septembre 2008.
- [92] B. Dromey, S. Kar, M. Zepf, and P. Foster. The plasma mirror-A subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Review of Scientific Instruments*, 75 : 645–649, March 2004.
- [93] T. Ceccotti, A. Lévy, H. Popescu, F. Réau, P. D’Oliveira, P. Monot, J. P. Geindre, E. Lefebvre, and P. Martin. Proton Acceleration with High-Intensity Ultrahigh-Contrast Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 99(18) :185002–+, November 2007.
- [94] C Thaury. *Génération d’harmoniques d’ordres élevés sur miroir plasma*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, Septembre 2008.
- [95] R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Physics of Plasmas*, 3 : 3425, 1996.
- [96] D. von der Linde and K. Rzàzewski. High-order optical harmonic generation from solid surfaces. 63 :499, 1996.

- [97] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, August 1998.
- [98] G. Bonnaud and G. Reisse. Particle code study of the influence of non-monochromaticity of laser-light on stimulated raman-scattering in laser-irradiated plasmas. *Nuclear Fusion*, 5(26) :633–646, 1986.
- [99] O. Coulaud, M. Dussère, P. Hénon, E. Lefebvre, and J. Roman. Optimization of a kinetic laser-plasma interaction code for large parallel systems. *Parallel Computing*, 29(9) :1175–1190, 2003.
- [100] J. P. Geindre, P. Audebert, and R. S. Marjoribanks. Relativistic AC Gyromagnetic Effects in Ultraintense Laser-Matter Interaction. *Physical Review Letters*, 97(8) : 085001–+, August 2006.
- [101] T. Baeva, S. Gordienko, and A. Pukhov. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma. *Physical Review E*, 74 : 046404, Oct 2006.
- [102] B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakis, S. Moustazis, R. Kodama, M. Tampo, C. Stoeckl, R. Clarke, H. Habara, D. Neely, S. Karsch, and P. Norreys. High harmonic generation in the relativistic limit. *Nature Physics*, 2 :456–459, July 2006.
- [103] B. Dromey, S. Kar, C. Bellei, D. C. Carroll, R. J. Clarke, J. S. Green, S. Kneip, K. Markey, S. R. Nagel, P. T. Simpson, L. Willingale, P. McKenna, D. Neely, Z. Najmudin, K. Krushelnick, P. A. Norreys, and M. Zepf. Bright Multi-keV Harmonic Generation from Relativistically Oscillating Plasma Surfaces. *Physical Review Letters*, 99(8) :085001, August 2007.
- [104] K. Eidmann, T. Kawachi, A. Marcinkevičius, R. Bartlome, G. D. Tsakiris, K. Witte, and U. Teubner. Fundamental and harmonic emission from the rear side of a thin overdense foil irradiated by an intense ultrashort laser pulse. *Physical Review E*, 72(3) :036413, September 2005.
- [105] U. Teubner, K. Eidmann, U. Wagner, U. Andiel, F. Pisani, G. D. Tsakiris, K. Witte, J. Meyer-ter Vehn, T. Schlegel, and Förster E. Harmonic emission from the rear side of thin overdense foils irradiated with intense ultrashort laser pulses. *Physical Review Letter*, 92(18) :185001, May 2004.
- [106] F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Physical Review Letter*, 59(1) : 52–55, Jul 1987.
- [107] G. Bonnaud, P. Gibbon, J. Kindel, and E. Williams. Laser interaction with a sharp-edged overdense plasma. *Laser and Particle Beams*, 9(2) :339–354, Apr 1991.
- [108] K. Nishikawa and M. Wakatani. *Plasma Physics*. Springer, 2000.
- [109] W. L. Kruer. *The Physics of Laser Plasma Interactions*. Westview Press, 1988.
- [110] D. E. Hinkel-Lipsker, B. D. Fried, and G. J. Morales. Analytic expressions for mode conversion in a plasma with a linear density profile. *Physics of Fluids B*, 4 :559–575, March 1992.

- [111] D. W. Forslund, J. M. Kindel, K. Lee, E. L. Lindman, and R. L. Morse. Theory and simulation of resonant absorption in a hot plasma. *Physical Review A*, 11 : 679–683, February 1975.
- [112] R. W. Means, L. Muschietti, M. Q. Tran, and J. Vaclavik. Electromagnetic radiation from an inhomogeneous plasma - Theory and experiment. *Physics of Fluids*, 24 :2197–2207, December 1981.
- [113] K. Kim and D.-H. Lee. Invariant imbedding theory of mode conversion in inhomogeneous plasmas. i. exact calculation of the mode conversion coefficient in cold, unmagnetized plasmas. *Physics of Plasmas*, 12(6) :062101, 2005.
- [114] E. Ahedo and J. R. Sanmartin. Resonant absorption in a plasma step profile . *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 29 :419–432, March 1987.
- [115] B. Dromey, D. Adams, R. Hörlein, Y. Nomura, S. G. Rykovanov, D. C. Carroll, P. S. Foster, S. Kar, K. Markey, P. McKenna, D. Neely, M. Geissler, G. D. Tsakiris, and M. Zepf. Diffraction-limited performance and focusing of high harmonics from relativistic plasmas. *Nature Physics*, 5 :146–152, February 2009.
- [116] F. Quéré, C. Thaury, J.-P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot, and P. Martin. Phase Properties of Laser High-Order Harmonics Generated on Plasma Mirrors. *Physical Review Letters*, 100(9) :095004–+, March 2008.
- [117] F. Quéré, C. Thaury, H. George, J. P. Geindre, E. Lefebvre, G. Bonnaud, S. Huller, P. Monot, and P. Martin. Basic mechanisms of laser high-order harmonic generation from plasma mirrors. *Journal of Modern Optics*, 55 :2711–2721, September 2008.
- [118] C. Thaury, H. George, F. Quéré, R. Loch, J.-P. Geindre, P. Monot, and P. Martin. Coherent dynamics of plasma mirrors. *Nature Physics*, 4 :631–+, August 2008.
- [119] P. Salières, P. Antoine, A. de Bohan, and M. Lewenstein. Temporal and Spectral Tailoring of High-Order Harmonics. *Physical Review Letters*, 81 :5544–5547, December 1998.
- [120] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, I. Christov, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane. Temporal phase control of soft-x-ray harmonic emission. *Phys. Rev. A*, 58 : 30–33, July 1998.
- [121] J. Mauritsson, P. Johnsson, R. López-Martens, K. Varjú, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, and A. L’Huillier. Measurement and control of the frequency chirp rate of high-order harmonic pulses. *Phys. Rev. A*, 70(2) :021801–+, August 2004.
- [122] K. Varjú, Y. Mairesse, B. Carré, M. B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. López-Martens, J. Mauritsson, K. J. Schafer, P. Balcou, A. L’Huillier, and P. Salières. Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses. *Journal of Modern Optics*, 52 :379–394, February 2005.
- [123] C. Corsi, A. Pirri, E. Sali, A. Tortora, and M. Bellini. Direct Interferometric Measurement of the Atomic Dipole Phase in High-Order Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 97(2) :023901–+, July 2006.

- [124] O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, N. Dudovith, D. Villeneuve, P.B. Corkum, and M.Y. Ivanov. High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules. *Nature*, 460 :972–977, 2009.
- [125] Y. Nomura, R. Hörlein, P. Tzallas, B. Dromey, S. Rykovanov, Z. Major, J. Osterhoff, S. Karsch, L. Veisz, M. Zepf, D. Charalambidis, F. Krausz, and G. D. Tsakiris. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas. *Nature Physics*, 5 :124–128, February 2009.
- [126] F. Quéré. Ultrafast science : Attosecond plasma optics. *Nature Physics*, 5 :93–94, February 2009.
- [127] P. Bowlan, P. Gabolde, A. Shreenath, K. McGresham, R. Trebino, and S. Akturk. Crossed-beam spectral interferometry : a simple, high-spectral-resolution method for completely characterizing complex ultrashort pulses in real time. *Optics Express*, 14 :11892–11900, November 2006.
- [128] P. Bowlan, P. Gabolde, and R. Trebino. Directly measuring the spatio-temporal electric field of focusing ultrashort pulses. *Optics Express*, 15 :10219–+, 2007.
- [129] W. P. Leemans, B. Nagler, A. J. Gonsalves, C. Tóth, K. Nakamura, C. G. R. Geddes, E. Esarey, C. B. Schroeder, and S. M. Hooker. GeV electron beams from a centimetre-scale accelerator. *Nature Physics*, 2 :696–699, October 2006.
- [130] A. P. L. Robinson, M. Zepf, S. Kar, R. G. Evans, and C. Bellei. Radiation pressure acceleration of thin foils with circularly polarized laser pulses. *New Journal of Physics*, 10(1) :013021–+, January 2008.
- [131] B. Qiao, M. Zepf, M. Borghesi, and M. Geissler. Stable GeV Ion-Beam Acceleration from Thin Foils by Circularly Polarized Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 102(14) :145002–+, April 2009.
- [132] J. Ren, W. Cheng, S. Li, and S. Suckewer. A new method for generating ultraintense and ultrashort laser pulses. *Nature Physics*, 3 :732–736, October 2007.
- [133] G. D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn, and F. Krausz. Route to intense single attosecond pulses. *New Journal of Physics*, 8 :19–+, February 2006.
- [134] Z.-M. Sheng, K. Mima, J. Zhang, and H. Sanuki. Emission of Electromagnetic Pulses from Laser Wakefields through Linear Mode Conversion. *Physical Review Letters*, 94(9) :095003–+, March 2005.
- [135] T. Z. Esirkepov, S. V. Bulanov, M. Kando, A. S. Pirozhkov, and A. G. Zhidkov. Boosted High-Harmonics Pulse from a Double-Sided Relativistic Mirror. *Physical Review Letters*, 103(2) :025002–+, July 2009.
- [136] O. Shorokhov, A. Pukhov, and I. Kostyukov. Self-Compression of Laser Pulses in Plasma. *Physical Review Letters*, 91(26) :265002–+, December 2003.
- [137] J. Faure, Y. Glinec, J. J. Santos, F. Ewald, J.-P. Rousseau, S. Kiselev, A. Pukhov, T. Hosokai, and V. Malka. Observation of Laser-Pulse Shortening in Nonlinear Plasma Waves. *Physical Review Letters*, 95(20) :205003–+, November 2005.
- [138] J. E. Ralph, K. A. Marsh, A. E. Pak, W. Lu, C. E. Clayton, F. Fang, W. B. Mori, and C. Joshi. Self-Guiding of Ultrashort, Relativistically Intense Laser Pulses

- through Underdense Plasmas in the Blowout Regime. *Physical Review Letters*, 102(17) :175003–+, May 2009.
- [139] C.-H. Pai, S.-Y. Huang, C.-C. Kuo, M.-W. Lin, J. Wang, S.-Y. Chen, C.-H. Lee, and J.-Y. Lin. Fabrication of spatial transient-density structures as high-field plasma photonic devices. *Physics of Plasmas*, 12(7) :070707–+, July 2005.
- [140] M.-W. Lin, Y.-M. Chen, C.-H. Pai, C.-C. Kuo, K.-H. Lee, J. Wang, S.-Y. Chen, and J.-Y. Lin. Programmable fabrication of spatial structures in a gas jet by laser machining with a spatial light modulator. *Physics of Plasmas*, 13(11) :110701–+, November 2006.
- [141] J. Faure, Y. Glinec, A. Pukhov, S. Kiselev, S. Gordienko, E. Lefebvre, J.-P. Rousseau, F. Burgy, and V. Malka. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams. *Nature*, 431 :541–544, September 2004.
- [142] K. Ta Phuoc, E. Esarey, V. Leurent, E. Cormier-Michel, C. G. R. Geddes, C. B. Schroeder, A. Rousse, and W. P. Leemans. Betatron radiation from density tailored plasmas. *Physics of Plasmas*, 15(6) :063102–+, June 2008.

